## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number:

10-189252

(43)Date of publication of application: 21.07.1998

(51)Int.CI.

H05B 33/26 H01L 29/786 H01L 21/336 H05B 33/10

(21)Application number: 08-357028

(71)Applicant: IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing:

26.12.1996

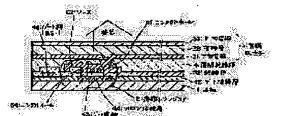
(72)Inventor: HOSOKAWA CHISHIO

## (54) ORGANIC ACTIVE ELECTROLUMINESCENT LIGHT EMITTING DEVICE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic active electroluminescent light emitting device of a large numerical aperture in which generation of image defects can be effectively prevented, and in which high quality image display can be realized.

SOLUTION: In an organic active electroluminescent light emitting device in which plural thin film transistors(TFT) 2 and plural organic electroluminescence elements 3 disposed to correspond to the TFT's 2 to be driven by the TFT's 2 are disposed on a substrate 1, a flattened layer-to-layer insulation film 4 is disposed between the TFT 2 and a lower electrode 31 of the organic electroluminescence element 3, and a drain terminal of the TFT 2 and the lower electrode 3 of the organic electroluminescence element 3 are electrically connected to each other through a contact hole 41 provided in the layer-to-layer insulation film 4.



## **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination] 14.10.1999

[Date of sending the examiner's decision of

rejection]

30.04.2003

Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3463971

[Date of registration] 22.08.2003

[Number of appeal against examiner's decision

2003-09622

of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's. 29.05.2003

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPI are not responsible for any

damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## **CLAIMS**

## [Claim(s)]

[Claim 1] In the organic active EL luminescence equipment which has two or more organic EL devices arranged with two or more thin film transistors (TFT) on the substrate corresponding to TFT driven by this TFT Organic active EL luminescence equipment characterized by coming to connect electrically through the contact hole in which the interlayer insulation film by which flattening was carried out was arranged between TFT and the lower electrode of an organic EL device, and the lower electrode of the terminal of TFT and an organic EL device was prepared at the interlayer insulation film.

[Claim 2] According to claim 1 organic active EL luminescence equipment with the transparent counterelectrode of said organic EL device.

[Claim 3] Organic active EL luminescence equipment according to claim 1 or 2 the numerical aperture (rate that the part which actually emits light occupies in a pixel) of whose is 75% or more.

[Claim 4] Two or more scan electrode lines and signal-electrode lines which were arranged in the shape of a XY matrix on the substrate, When it has the electric switch arranged near this scan electrode line and the signal electrode line and this electric switch performs switching by the scan signal pulse and the signal pulse In the organic active EL luminescence equipment which the organic EL device in the unit pixel combined with this electric switch emits light or stops [luminescence], and performs image display The thin film transistor as which an electric switch chooses a luminescence pixel (the first transistor), It is formed or more from one, respectively, and becomes and the thin film transistor (the second transistor) which drives an organic EL device—between the first and the second transistor, and the lower electrode of an organic EL device Organic active EL luminescence equipment which the interlayer insulation film by which flattening was carried out is arranged, and is characterized by

coming to connect the drain of the second transistor, and the lower electrode of an organic EL device electrically further.

[Claim 5] Organic active EL luminescence equipment according to claim 4 with which it comes to form the barrier layer of said first and the second transistor from polish recon. [Claim 6] According to claim 4 or 5 organic active EL luminescence equipment with the transparent counterelectrode of said organic EL device.

## **DETAILED DESCRIPTION**

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to organic active EL luminescence equipment. It is related with the organic active EL luminescence equipment used suitable for the display device of a noncommercial use and industrial use, a color display, etc. in more detail.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, in organic electroluminescence luminescence equipment (display), the technique of carrying out a simple drive in XY matrix, and performing image display is known (JP,2-37385,A, JP,3-233891,A, etc.). However, in such a simple drive, since a line sequential drive was performed and it would be hundreds times [ by which brightness is observed at the moment of being required ] the brightness when there are many scans as hundreds of, there was the following problem.

[0003] (1) Driver voltage becomes high. Since [in under direct-current working voltage] it usually becomes 2 to 3 or more times, as for an electrical potential difference, effectiveness falls. Therefore, power consumption becomes large.

(2) Since the amount of currents which flows momentarily becomes hundreds times, an organic luminous layer becomes easy to deteriorate.

Like (3) and (2), since the energization current is very large, the voltage drop of electrode wiring poses a problem.

[0004] The following active matrix drive is proposed as the technique of solving above mentioned (1) · (3). That is, the display which performs an active matrix drive further is indicated using ZnS which is an inorganic substance as a fluorescent substance (U.S. Pat. No. 4143297). However, in this technique, in order to use an inorganic fluorescent substance, driver voltage had become more than 100V with the problem highly. The same technique is IEEE. Trans Electron It is indicated by Devices

and 802 (1971). On the other hand, a large number development also of the display which performs an active matrix drive using an organic fluorescent substance is carried recently (JP,7·122360,A, JP,7-122361,A, JP,7.153576,A, JP,8-54836,A, out JP,7-312290,A, JP,8-109370,A, JP,8-129359,A, JP.7-111341,A, JP,8-241047,A, JP,8-227276,A, etc.). The following point had become a problem, although there was the description in which the driver voltage of a highly minute display was [reduce / it is set to 1 / 2 · 1/3, and / power consumption ] extremely excellent compared with that effectiveness is very efficient in the range of 3 lm/w · 15 lm/w, and a simple drive when driver voltage low battery-ized the above-mentioned technique sharply with less than [ 10V ] by using an organic fluorescent substance and an efficient organic fluorescent substance was used.

[0005] (1) Usually, on the substrate of translucency, even in the pixel, TFT (thin film transister) which consists of alpha Si, polish recon, etc. received, two were prepared, and at least one or since TFT was chosen and turned on further, many scan electrode lines and signal-electrode lines were formed on said substrate. In order to insulate a TFT component and an organic EL device, on TFT, the insulator layer which consists of silicon nitride or silicon oxide is prepared. However, since the thickness of TFT was set to 0.2 micrometers - 1 micrometer including the gate and the drain, and the source electrode and irregularity had it, this was avoided, and lower EL electrode needed to be formed and it was not able to avoid that a nonluminescent part arose in a pixel. In taking out light from a translucency substrate side, in order that a scan electrode line and a signal-electrode line might also interrupt light further, the numerical aperture (rate that the part which actually emits light occupies in a pixel) of a pixel was small. For example, in some which were shown in JP,7-122362,A, the numerical aperture was only 56%, the nonluminescent part was conspicuous and there was a problem that a good image was not obtained. In some which were shown in coincidence at drawing 3 of JP,8-241047,A, there was also a problem that high brightness was hard to be obtained. [0006] (2) Moreover, like, although shown in drawing 3 of JP,8-241047,A, when a lower EL electrode was formed in opening of a wrap insulator layer for TFT, since it was technically difficult, it was easy to produce faults, such as the etching remainder, the luminescence defect occurred, and it had become a problem to etch the pattern edge of an insulator layer good.

[0007] (3) On the other hand, when taking out light from the opposite side by the side of a substrate, a numerical aperture may become large and a good image may be obtained. However, since flattening of the wrap interlayer insulation film is not carried out in TFT, the defects of the organic EL device formed in the upper part of the irregularity of TFT

occur frequently, and it usually becomes a problem. Since organic layers are 0.05 micrometers - 0.2 micrometers and a thin layer, as for an organic EL device, a defect is easily generated by lower irregularity. For this reason, although shown in <u>drawing 1</u> R> 1 and <u>drawing 2</u> of JP,8-54836,A, usually the organic EL device was formed like in addition to the scan electrode line, the signal electrode line, and the part in which TFT is formed. Therefore, the numerical aperture of the conventional thing could not but become small.

[0008] It explains still more concretely about a Prior art. <u>Drawing 5</u> is a circuit diagram organic [ in the conventional technique / TFTEL ]. Two or more formation of a gate line (scan electrode line) and the source line (signal electrode line) is carried out on the substrate, and XY matrix is made. As two TFT(s) 21 and 22 per pixel show <u>drawing 5</u>, it has connected with this gate line and a source line, and into 1 pixel, the capacitor 23 for holding the gate of 2nd TFT22 to constant potential is formed further, and the organic EL device 3 shown with a slash in drawing drives by this 2nd TFT22.

[0009] The sectional view of the pixel in an A-A'line is shown in drawing 6 R> 6 among drawing. For 2nd TFT22, as shown in drawing 7, polish recon is formed as a barrier layer, and the thickness of the polish recon island 71 is 200nm and the gate SiO2. For the thickness of 100nm and the polish recon gate 73, thickness is SiO2 surrounding 300nm and the polish recon gate. Thickness is 500nm. As shown in drawing, a TFT part forms irregularity by the thickness of the polish recon island 71 and the polish recon gate 73. Only 500-600nm of heights projects. Therefore, even if there is an intention which forms an organic EL device on TFT, the luminescence pixel of good organic electroluminescence cannot be formed that it is easy to produce an open circuit of a lower electrode, an organic layer, and a counterelectrode with this irregularity. Moreover, with this conventional technique, light will be taken out from ITO31 which is a lower electrode, i.e., a substrate 1 side. For this reason, in order that TFT, a gate line, and a source line might interrupt light, there was a problem that the numerical aperture of a pixel became small.

[0010] Moreover, as other Prior arts, as shown in <u>drawing 8</u>, there is a technique which formed the hole injection electrode 81 (it is usually transparent) which is a counterelectrode in the upper part. However, since there is irregularity of a TFT part also in this technique, this part is avoided, the electron injection electrode 82 is formed, and the pixel which emits light is formed. Moreover, since the irregularity on the gate electrode 83, the source electrode 84, and the drain electrode 85 also poses a problem at this rate, the organic layer 32 avoids this part and is formed.

[0011]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] It is made in view of an above mentioned problem, and the numerical aperture of this invention is large, and generating of an image defect is prevented effectively and it aims at offering the organic active EL luminescence equipment in which the image display of high quality is possible.

[0012]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above mentioned purpose, according to this invention, on a substrate Two or more thin film transistors (TFT), In the organic active EL luminescence equipment which is driven by this TFT and which has two or more organic EL devices arranged corresponding to TFT Between TFT and the lower electrode of an organic EL device, the interlayer insulation film by which flattening was carried out is arranged. And the organic active EL luminescence equipment characterized by coming to connect the lower electrode of the terminal of TFT and an organic EL device electrically through the contact hole established in the interlayer insulation film is offered.

[0013] Moreover, organic active EL luminescence equipment with the transparent counterelectrode of said organic EL device is offered as the desirable mode.

[0014] Moreover, the organic active EL luminescence equipment the numerical aperture (rate that the part which actually emits light occupies in a pixel) of whose is 75% or more is offered as the desirable mode.

[0015] Moreover, two or more scan electrode lines and signal-electrode lines which were arranged in the shape of a XY matrix on the substrate, When it has the electric switch arranged near this scan electrode line and the signal-electrode line and this electric switch performs switching by the scan signal pulse and the signal pulse In the organic active EL luminescence equipment which the organic EL device in the unit pixel combined with this electric switch emits light or stops [luminescence], and performs image display The thin film transistor as which an electric switch chooses a luminescence pixel (the first transistor), It is formed or more from one, respectively, and becomes, and the thin film transistor (the second transistor) which drives an organic EL device—between the first and the second transistor, and the lower electrode of an organic EL device The interlayer insulation film by which flattening was carried out is arranged, and the organic active EL luminescence equipment further characterized by coming to connect the drain of the second transistor and the lower electrode of an organic EL device electrically is offered.

[0016] Furthermore, the organic active EL luminescence equipment with which it comes to form the barrier layer of said first and the second transistor from polish recon is offered as the desirable mode.

## [0017]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the operation gestalt of this invention is explained concretely, referring to a drawing. <u>Drawing 1</u> is the sectional view showing typically 1 operation gestalt of the organic active EL luminescence equipment of this invention, and is an A-A'line sectional view in <u>drawing 3</u>. <u>Drawing 2</u> is the explanatory view showing the drive circuit of the organic EL device used for this invention. <u>Drawing 3</u> is the top view showing typically 1 operation gestalt of the organic active EL luminescence equipment of this invention. <u>Drawing 4</u> is the sectional view showing typically the process which putter izes to an island the polish recon layer of the thin film transistor used for this invention.

[0018] One operation gestalt of the organic active EL luminescence equipment of this invention As shown in <u>drawing 1</u>, the thin film transistor 2 of plurality [ top / substrate 1 ] (TFT), It has two or more organic EL devices 3 which are driven by this TFT2 and which were arranged corresponding to TFT2. Between TFT2 and the lower electrode 31 of an organic EL device 3 The interlayer insulation film 4 by which flattening was carried out is arranged, and the lower electrode 31 of the drain terminal of TFT2 and an organic EL device 3 is electrically connected through the contact hole 41 established in the interlayer insulation film 4.

[0019] Moreover, an organic EL device is driven as follows by TFT. As shown in drawing 2 and drawing 3, it has two or more scan electrode line (Yj-Yj+n) and the signal electrode line (Xi-Xi+n) when it was arranged in the shape of a XY matrix, and the electric switch (TFT2) arranged in this electrode line (Yj-Yj+n) and (Xi-Xi+n) near. This electric switch is formed from one or more each which is the first transistor (Tr1) 21 and second transistor (Tr2) 22. When this electric switch performs switching by the scan signal pulse and the signal pulse, the organic EL device 3 in the unit pixel combined with this electric switch emits light or stops [luminescence], and performs image display.

[0020] In addition, the first transistor (Tr1) 21 chooses a luminescence pixel. Moreover, the second transistor (Tr2) 22 has the function to drive an organic EL device.

[0021] Moreover, said interlayer insulation film 4 is arranged between the first transistor (Tr1) 21 and the second transistor (Tr2) 22, and the lower electrode 31 of an organic EL device 3, and the drain terminal of the second transistor (Tr2) and the lower electrode 31 of an organic EL device are connected further electrically.

[0022] Hereafter, it explains still more concretely. The organic EL device 3 used for this invention is driven by the active matrix circuit, as shown in <u>drawing 2</u>. The first desired transistor (Tr1) 21 is chosen by the pulse transmitted through a scan electrode

line (gate line) (Yj-Yj+n), and the pulse transmitted through a signal-electrode line (Xi-Xi+n), and a charge is charged by the capacitor 23 formed between a common electrode line (Ci · Ci+n) and the source of the first transistor (Tr1) 21. Thereby, the gate of the second transistor (Tr2) 22 serves as fixed potential, and the second transistor (Tr2) 22 will be in ON condition. This ON condition will continue supplying a current to the lower electrode 31 of the organic EL device 3 which is held until a gate pulse is transmitted next, and is connected to the drain terminal of the second transistor (Tr2) 22.

[0023] Moreover, in this invention, as shown in <u>drawing 1</u>, the interlayer insulation film 4 is formed on the transistor 2 (the first transistor (Tr1), the second transistor (Tr2)) of a thin film and the gate line (Yj-Yj+n), and the signal-electrode line (Xi-Xi+n), and flattening of this interlayer insulation film 4 is carried out.

[0024] Moreover, the lower electrode 31 of an organic EL device 3 is formed on the interlayer insulation film 4, and the second drain terminal and lower electrode 31 of a transistor (Tr2) have connected electrically through the contact hole 41 formed in this interlayer insulation film 4.

[0025] Furthermore, this lower electrode is prepared on the first transistor (Tr1) 21, the second transistor (Tr2) 22, the signal-electrode line, and the gate line 46, as shown in drawing 3. In addition, the part surrounded with the alternate long and short dash line shows the lower electrode 31 of an organic EL device among drawing 3.

[0026] Hereafter, each component is explained.

1. The substrate used for substrate this invention is insulation, and it is desirable that they are Xtal or a transparent material like glass. Here, transparence means having the property which penetrates sufficient light to the practical use in organic active EL luminescence equipment. For example, what penetrates 50% or more of light in a desired frequency range is considered to be transparence. Moreover, glass means the glass dissolved or distorted at the temperature of about 600 degrees C or more whenever [low-temperature].

[0027] 2. in thin film transistor this invention, a thin film transistor (TFT) is used for the drive of an organic EL device — having — concrete — as an electric switch — the first transistor (Tr1) and the second transistor (Tr2) — it is formed or more from one, respectively. It sets to <u>drawing 1</u> and this barrier layer of Tr1 and Tr2 is n+/i/n+. It is the shown part and is n+. The part doped by N type and the part where i is not doped are shown. The part where doping of this barrier layer was carried out may be P+ doped by P type. This barrier layer is preferably formed by polish recon. Polish recon shows sufficient stability to energization compared with an amorphous silicon.

[0028] An organic semiconductor can be mentioned as other desirable ingredients. There are thiophene oligomer, Pori (P-phenylenevinylene), etc.

[0029] Although the laminating of the polish recon can be carried out with various CVD methods, as preferably shown in <u>drawing 4</u> (a), it carries out the laminating of alpha-Si by the plasma-CVD method.

[0030] Then, as shown in <u>drawing 4</u> (b), annealing crystallization is carried out with excimer lasers, such as KrF (248nn) laser, (SID'96, Digest oftechnical papers P17-28). The desirable thickness of alpha-Si is 40-200nm. As annealing of an excimer laser, it is desirable to maintain in substrate temperature of 100-300 degrees C, and it is desirable to annealing ize with laser light with the amount of energy of 100 - 300 mJ/cm2.

[0031] Moreover, a polish recon layer is patternized by the island by the photolithography, as shown in <u>drawing 4</u> (c). Although the substrate used is a crystal ingredient like Xtal, it is an ingredient like glass which is not more expensive whenever [low temperature] preferably. When a glass substrate is used, in order that the whole manufacture of TFT-EL may avoid melting of glass, or distortion and may avoid outside diffusion (out-diffusion) of a dopant in an active region, it carries out at low process temperature. Thus, 1000 degrees C or less of all manufacture phases must be preferably made below 600 degrees C to a glass substrate.

[0032] Next, as shown in drawing 4 (d), the laminating of the insulated gate ingredient 42 is carried out over the polish recon island 71 top and the front face of an insulating substrate 1. An insulating material is diacid-ized silicon in which a laminating is carried out by desirable chemical vacuum deposition (CVD) like the plasma enhancement CVD (PECVD) or reduced pressure CVD (LPCVD). Gate oxide insulation layer thickness is about 100-200nm preferably. In order for 250-400 degrees C to obtain the insulated gate ingredient of high quality further preferably as substrate temperature, it is desirable to give about 1-3 hrs of annealing at 300-600 degrees C.

[0033] In the next phase, as shown in <u>drawing 4</u> (e), the gate electrode 43 is formed by vacuum evaporation or sputtering. Desirable thickness is 200-500nm.

[0034] Next, as shown in <u>drawing 4</u> (f) · (h), pattern NINGU of the gate electrode 43 is carried out. However, when using aluminum gate here, in order to insulate, it is desirable to perform anodic oxidation 2 times. About anodic oxidation, it is indicated by JP,8·15120,B at the detail.

[0035] Next, as shown in <u>drawing 4</u> (i), it is n+ by ion doping. Or P+ A part is formed. There is the following technique of using polish recon as the gate as an option. With this technique, the polish recon gate electrode 43 shown in <u>drawing 1</u> is patternized by carrying out a laminating on a gate insulating layer, and carrying out a

photolithography on a polish recon island so that the source and a drain field may be formed in a polish recon field after the ion implant. A gate electrode material is the polish recon preferably formed from the amorphous silicon. The ion implant is electric conduction ized by the N type dopant which is arsenic preferably. A polish recon gate electrode is offered as a pars basilaris ossis occipitalis electrode of a capacitor again. Thus, manufacture is not more complicated and can be made not more expensive. The gate bus 46 shown in drawing 1 is applied and patternized on an insulating layer. A gate bus is a desirable metal silicon ghost like a silicon-ized tungsten (WSi). This is because the field resistance of a metal silicon ghost can carry out to below several ohms / \*\*

[0036] However, it may replace with metal silicon ghosts, such as WSi, and metals, such as aluminum alloy, and aluminum, Cr, W, Mo, may be used. In such a case, there is a merit which lower field resistance realizes. Moreover, TaN may be used as the gate. In the next phase, the insulator layer which consists of diacid-ized silicon, a silicon nitride, polyimide, etc. is applied over the whole.

[0037] Next, a signal electrode line and a scan electrode line are formed. While forming metal wires, such as aluminum alloy, and aluminum, Cr, W, Mo, by the photolithography, they are Tr1 and Tr2. Contact of a drain, the source, etc. is performed in the part which carried out opening of the above-mentioned insulator layer. This insulator layer is shown by the sign of 52 of <u>drawing 1</u>. The inside of the above, and SiO2 For example, it can set up with a substrate temperature of 250-400 degrees C in between by the ability making TEOS (tetra-ethoxy silane) into gas, and can obtain by PECVD. Moreover, substrate temperature can be acquired also as 100-300 degrees C by ECR-CVD.

[0038] 3. The interlayer insulation film which is used for interlayer insulation film this invention and by which flattening was carried out can be formed by following (1) or the approach of (2).

- (1) Form the contact hole 41 shown in <u>drawing 1</u> by etching using commercial coating liquid as membrane formation polyimide by the spin coat of the polyimide coating film, and carry out opening of the drain connection. Furthermore, opening of an insulator layer 52 and the gate dielectric film 42 is carried out by etching, and a drain is exposed. Polyimide is a desirable example in order to give the front face by which flattening was carried out.
- (2) the etchback method various CVD methods by plasma etching, plasma CVD, PECVD (plasma in HANSUDO CVD), and LPCVD (reduced pressure CVD) -- form 1 micrometer 3 micrometers of silicas preferably by law etc. Furthermore, polymer coating is

performed on the whole surface. Furthermore, it is CF4 about a type of gas by reactive ion etching (RIE). It etches by considering as the mixed gas of oxygen. Etching thickness is 0.5 micrometers  $\cdot$  2 micrometers preferably. The interlayer insulation film (SiO2) by which flattening was carried out by this approach can be obtained. PSG and BSG (phosphorus silica glass, boron silica glass) besides a silica can also be used for this approach, and it can \*\* using silicon nitride system compounds, such as Si3N4, in it.

[0039] 4. In the organic EL device used for organic EL device this invention, what has a recombination field and a luminescence field at least is used as an organic layer (organic layer). Although only a luminous layer may be used for them as an organic layer in this invention since this recombination field and a luminescence field usually exist in a luminous layer, for example, a hole-injection layer, an electron injection layer, an organic-semiconductor layer, an electronic barrier layer, an adhesion improvement layer, etc. can be used for them if needed in addition to a luminous layer.

[0040] Next, the typical example of a configuration of the organic EL device used for this invention is shown. Of course, it is not limited to this.

- \*\* A transparent electrode (anode plate) / luminous layer / electrode (cathode)
- \*\* A transparent electrode (anode plate) / hole injection layer / luminous layer / electrode (cathode)
- \*\* A transparent electrode (anode plate) / luminous layer / electron injection layer / electrode (cathode)
- \*\* A transparent electrode (anode plate) / hole injection layer / luminous layer / electron injection layer / electrode (cathode).
- \*\* The structure of an anode plate / organic semiconductor layer / luminous layer / cathode \*\* anode plate / organic semiconductor layer / electronic barrier layer / luminous layer / cathode \*\* anode plate / hole injection layer / luminous layer / adhesion improvement layer / cathode can be mentioned. In these, the configuration of \*\* is usually used preferably.

[0041] (4) The luminescent material of 1. luminous layer organic EL device is mainly an organic compound, and the following compounds are specifically mentioned by the desired color tone. First, when obtaining purple luminescence from an ultraviolet region, the compound expressed with the following general formula is mentioned.

[0042]

[Formula 1]



[0043] In this general formula, X shows the following compound.

[0044]

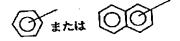
[Formula 2]

$$+ \bigcirc \uparrow_n$$

[0045] n is 2, 3, 4, or 5 here. Moreover, Y shows the following compound.

[0046]

[Formula 3]



[0047] the alkyl group, the alkoxy group, the hydroxyl group, a sulfonyl group, a carbonyl group, an amino group, a dimethylamino radical, or a diphenylamino radical of carbon numbers 1-4 etc. is independent to the phenyl group of the above mentioned compound, a phenylene group, and a naphthyl group — or more than one may be permuted. Moreover, these are even if it joins together mutually and forms saturation 5 membered ring and six membered rings. Moreover, what was combined with the phenyl group, the phenylene group, and the naphthyl group with the para position is desirable because of formation of the vacuum evaporationo film with it. [ good affinity and ] [ smooth ] Specifically, they are the following compounds. Especially, p-quarter phenyl derivative and p-KUINKU phenyl derivative are desirable.

[0048]

[Formula 4]

(1)

(2)

(3)

$$\bigcirc \bigcirc \bigcirc \bigcirc \bigcirc \bigcirc \bigcirc \bigcirc$$

(4)

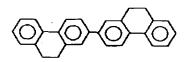
・5'''' ーテトラー t ープチルーセキシフェニル (TBS)

(5)

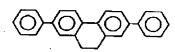
[0049]

[Formula 5]

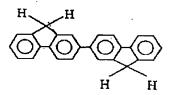
(6)



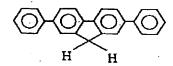
(7)



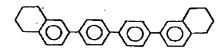
(8)



(9)



(10)



[0050]

[Formula 6]

(11)

$$H_3 C O - O - O C H_3$$

(12)

(13)

(14)

[0051]

[Formula 7]

(15)

$$\overset{H}{\longrightarrow} N - \bigoplus - \bigoplus - \bigoplus - \bigoplus - N - \bigvee_{H}$$

(17)

[0052] Next, in order to obtain green luminescence from blue, fluorescent brighteners, such as for example, a benzothiazole system, a benzimidazole system, and a benzooxazole system, a metal chelation oxy-NOIDO compound, and a styryl benzenoid compound can be mentioned.

[0053] If a compound name is shown concretely, what is indicated by JP,59-194393, A can be mentioned, for example. As the example of representation, it is 2 and 5 screw (5, 7 G 3. t-pentyl-2-benzoxazolyl). 1, 4-thiadiazole, Α and 4'-screw (5, 7-t-pentyl-2-benzoxazolyl) stilbene, 4 and 4' screw [ - ] [5 (2-methyl-2-butyl)-2-benzoxazolyl] stilbene, 2, 5-screw (5, 7-G t-pentyl-2-benzoxazolyl) thiophene, 2, 5-screw [5-alpha and alpha-dimethylbenzyl-2-benzoxazolyl] thiophene, 2, 5-screw [5 and 7-G (2-methyl-2-butyl)-2-benzoxazolyl]-3, 4 diophenyl thiophene, 2, 5-screw (5-methyl-2-benzoxazolyl) thiophene, A 4 and 4'-screw (2-benzoxazolyl) biphenyl,  $5 \cdot methyl \cdot 2 \cdot [2 \cdot [4 \cdot (5 \cdot methyl \cdot 2 \cdot benzoxazolyl) \ phenyl] \ vinyl] \ benzooxazole, \ Benzooxazole$ 

systems, such as 2-[2-(4-chlorophenyl) vinyl] [1 and 2-naphth d] oxazole, 2-2' -(p-phenylenedivinylene)-Benzothiazole systems, such as bis-benzothiazole, Fluorescent brighteners, such benzimidazole as systems, such 2-[2-[4-(2-benzoimidazolyl) phenyl] vinyl] benzimidazole and 2-[2-(4-carboxyphenyl) vinyl benzimidazole, can be mentioned. Furthermore, other useful compounds are enumerated by the chemistry OBU synthetic soybeans 1971, 628-637 pages, and 640 pages.

[0054] As said chelation oxy-NOIDO compound, what is indicated by JP,63-295695,A, for example can be used. As the example of representation, tris (eight quinolinol) aluminum, screw (eight quinolinol) magnesium, Screw ([Benzof]-eight quinolinol) zinc, screw (2-methyl-8-quinolate) aluminum oxide, A tris (eight quinolinol) indium, tris (5-methyl-eight quinolinol) aluminum, An eight-quinolinol lithium, a tris (5-chloro-eight quinolinol) gallium, 8-hydroxyquinoline system metal complexes, dilithium EPINTORI dione, etc., such as screw (5-chloro-eight quinolinol) calcium and Pori [zinc (II)-screw (8-hydroxy-5-KINORI nonyl) methane], can be mentioned.

[0055] Moreover, as said styryl benzenoid compound, what is indicated by the Europe patent No. 0319881 specification and the Europe patent No. 0373582 specification, for example can be used. As the example of representation, 1, 4-screw (2-methyl styryl) benzene, 1, 4-screw (3-methyl styryl) benzene, 1, 4-screw (3-methyl styryl) benzene, 1, 4-screw (3-ethyl styryl) benzene, 1, 4-screw (3-ethyl styryl) benzene, 1, 4-screw (2-methyl styryl)-2-methylbenzene, 1, and 4-screw (2-methyl styryl)-2-ethylbenzene etc. can be mentioned.

[0056] Moreover, the JISUCHIRIRU pyrazine derivative currently indicated by JP,2-252793, A can also be used as an ingredient of a luminous layer. As the example of representation, 2, 5-screw (4-methyl styryl) pyrazine, 2, 5-screw (4-ethyl styryl) pyrazine, 2, 5-screw [2-(1-naphthyl) vinyl] pyrazine, 2, 5-screw (4-methoxy styryl) pyrazine, 2, and 5-screw [2-(4-biphenyl) vinyl] pyrazine, 2, and 5-screw [2-(1-pyrenyl) vinyl] pyrazine etc. can be mentioned. As other things, the polyphenyl system compound currently indicated by for example, the Europe patent No. 0387715 specification can also be used as an ingredient of a luminous layer.

[0057] Furthermore, the fluorescent brightener, metal chelation oxy-NOIDO compound which were mentioned above, In addition to a styryl benzenoid compound etc., and [ non / for example, / 12-phtalo peri /, (J.Appl.Phys., the 27th volume, L713 (1988)) ] 1, 4-diphenyl-1,3-butadiene, 1, 1 and 4, and 4-tetra-phenyl-1,3-butadiene (above Appl. Phys. Lett., the 56th volume, L799 (1990)), The North America Free Trade Agreement RUIMIDO derivative (JP,2-305886,A), a perylene derivative (JP,2-189890,A), An OKISA

diazole derivative (JP,2·216791,A or OKISA diazole derivative indicated by Hamada and others at the 38th applied physics relation union lecture meeting), An aldazine derivative (JP,2·220393,A), a PIRAJIRIN derivative (JP,2·220394,A), A cyclopentadiene derivative (JP,2·289675,A), a pyrrolo pyrrole derivative (JP,2·296891,A), A styryl amine derivative (Appl.Phys.Lett., the 56th volume, L799 (1990)), A coumarin system compound (JP,2·191694,A), the international public presentation official report WO 90/13148, Appl.Phys.Lett., vol 58, 18, and P1982 (1991) A high molecular compound which is indicated It can use as an ingredient of a luminous layer.

[0058] It is desirable to use an aromatic series JIMECHIRI DIN system compound (thing of the indication to the Europe patent No. 0388768 specification or JP,3-231970,A) as an ingredient of a luminous layer especially in this invention. As an example, 1, 4-phenylene dimethylidyne, 4, and 4-phenylene dimethylidyne, 2, 5-xylene JIMECHIRI DIN, 2,6-naphthylenedimethylidyne, 1,4-biphenylene dimethylidyne, 1, 4-p-terephenylene dimethylidyne, A 9, 10-anthracene G RUJIRU methylidyne, 4, and 4'-screw (2 and 2-G t-buthylphenyl vinyl) biphenyl, The 4 and 4'-screw (2 and 2-diphenyl vinyl) biphenyl (it outlines Following DPVBi) (hereafter written as DTBPBBi) can mention those derivatives.

[0059] Furthermore, the general formula indicated by JP,5·258862,A etc. (the compound expressed with R2·Q3·AL·O·L is also mentioned.)

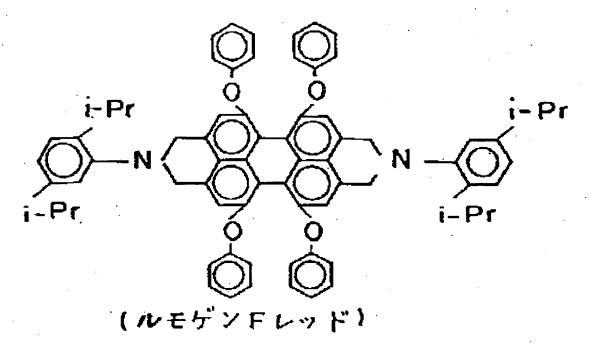
(L is the hydrocarbon of 6.24 carbon atoms which come to be unfortunate in a phenyl part among the above-mentioned formula.) O-L is a FENIRATO ligand and Q expresses a permutation 8-quinolate ligand. R2 8-quinolate ring substituent chosen so that it might block in three dimensions that two permutation 8-quinolate ligands exceed and combine aluminum atom is expressed. Specifically with an Screw (2-methyl-8-quinolate) (Para-phenyl phenolate) aluminum (III) (following PC-7), screw (2-methyl-8-quinolate) (1-naphth RATO) aluminum (III) (following PC- 17), etc. are mentioned. In addition, the method of obtaining the efficient blue using doping by JP,6-9953,A etc. and mixed green luminescence is mentioned. In this case, the same fluorochrome as what is used green from blue as the luminescent material indicated above as a host and a dopant as a host of the strong fluorochrome of until, for example, a coumarin system, and the above mentioned publication can be mentioned. concrete " as a host with luminescent material of a JISUCHIRIRU arylene frame we specially we desirable .. as DPVBi and a dopant .. diphenylamino vinyl arylene .. N and N-diphenylamino vinylbenzene (DPAVB) can be mentioned especially preferably.

[0060] As a luminous layer which obtains white luminescence, although there is especially no limit, it can mention the following.

- \*\* The thing which specifies the energy level of each class of the organic electroluminescence laminating structure, and is made to emit light using tunnel impregnation (the Europe public presentation patent No. 0390551 official report)
- That the white light emitting device is indicated to be as an example with the component which uses tunnel impregnation as well as \*\*\*\* (JP,3-230584,A)
- \*\* That the luminous layer of the two-layer structure is indicated to be (JP,2-220390,A and JP,2-216790,A)
- \*\* What consisted of ingredients with which a luminous layer is divided into plurality and luminescence wavelength differs, respectively (JP,4-51491,A)
- \*\* The thing of a configuration of having carried out the laminating of a blue emitter (fluorescence peak 380nm-480nm) and the green emitter (480nm 580nm), and having made the red fluorescent substance contain further (JP,6-207170,A)
- \*\* It has the field where the blue luminous layer contained the blue fluorochrome, and the green luminous layer contained the red fluorochrome, and the thing of the configuration of \*\* is preferably used also in the thing (JP,7-142169,A) of a configuration of containing a green fluorescent substance further. Moreover, the example of the red fluorescent substance which obtains red luminescence is shown in [-izing 8].

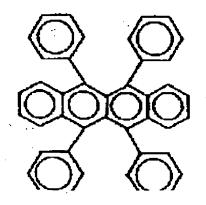
[0061]

[Formula 8]



(ジシアノメチレンピラン)

(フェノキサゾン)



[0062] as the approach of forming a luminous layer using said ingredient · vacuum deposition, a spin coat method, and LB well known approaches, such as law, are applicable. As for especially a luminous layer, it is desirable that it is the molecule deposition film. the thing of the thin film which deposition was carried out to the molecule deposition film from the ingredient compound of a gaseous phase condition here, and was formed, and the film solidified and formed from the ingredient compound of a solution condition or a liquid phase condition -- it is -- usually -- this molecule deposition film .. LB .. with the thin film (molecule built up film) formed of law, it is classifiable with the difference of condensation structure and higher order structure, and the functional difference resulting from it. Moreover, after melting a binder and ingredient compounds, such as resin, to a solvent and considering as a solution as indicated by JP,57-51781,A, a luminous layer can be formed also by thin film izing this with a spin coat method etc. Thus, \*\* and the range of 5nm - 5 micrometers of usual which especially a limit does not have about the thickness of the luminous layer formed, and can be suitably chosen according to a situation are desirable. The luminous layer of an organic EL device has the following functions. Namely, the function to which an electron hole can be poured into from an anode plate or a hole injection layer at the time of \*\* impregnation function; electric-field impression, and the function to in\_which an electron can be poured in, and the charge (an electron and electron hole) of which \*\* transportation function; impregnation was done are moved by the force of electric field from cathode or an electron injection layer, \*\* luminescence function; the function, \*\*\*\*\* which offers the place of the recombination of an electron and an electron hole and ties this to luminescence. However, although size of reliance is good for the transportation ability which an electron hole is poured in, easy and an electron are poured in, and a difference may be in easy, and is expressed with the mobility of an electron hole and an electron, it is desirable to move one of charges.

[0063] (4) Although ·2. hole injection layer, next a hole injection layer are not necessarily required for the component used for this invention, it is more desirable to use for improvement in the luminescence engine performance. It is a layer which helps the hole injection to a luminous layer, this hole injection layer has large hole mobility, and its ionization energy is usually as small as 5.5eV or less. The ingredient which conveys an electron hole to a luminous layer by lower electric field as such a hole injection layer is desirable, and at the time of electric field impression of 104 · 106 V/cm, if the mobility of an electron hole is 10-6cm2 / V, and a second at least, in addition, it is still more desirable. About such a hole-injection ingredient, if it has the

aforementioned desirable property, there is especially no limit, and it can choose and use the thing of arbitration in photoconductive material conventionally out of what is commonly used as charge transportation material of an electron hole, and the well-known thing used for the hole injection layer of an EL element.

[0064] As an example, for example A triazole derivative (reference, such as a U.S. Pat. No. 3,112,197 number specification), An OKISA diazole derivative (reference, such as a U.S. Pat. No. 3,189,447 number specification), an imidazole derivative (reference, such as JP,37-16096,B) and the poly aryl alkane derivative (a U.S. Pat. No. 3,615,402 number specification --) A 3,820,989 specification, a 3,542,544 specification, JP,45-555,B, a 51-10983 official report, JP,51-93224,A, A 55-17105 official report, a 56-4148 official report, a 55-108667 official report, Reference, such as a 55-156953 official report and a 56-36656 official report, a pyrazoline derivative and a pyrazolone derivative (a U.S. Pat. No. 3,180,729 specification ··) A 4,278,746 specification, JP,55-88064,A, A 55-88065 official report, a 49-105537 official report, a 55-51086 official report, A 56-80051 official report, a 56-88141 official report, a 57-45545 official report, Reference, such as a 54-112637 official report and a 55-74546 official report, a phenylenediamine derivative (a U.S. Pat. No. 3,615,404 specification -) JP,51-10105,B, a 46-3712 official report, a 47-25336 official report, Reference, such as JP,54-53435,A, a 54-110536 official report, and a 54-119925 official report, an arylamine derivative (a U.S. Pat. No. 3,567,450 specification and a 3,180,703 specification --) A 3,240,597 specification, a 3,658,520 specification, A 4,232,103 specification, a 4,175,961 specification, A 4,012,376 specification, JP,49-35702,B, A 39-27577 official report, JP,55-144250,A, a 56-119132 official report, Reference, such as a 56-22437 official report and the West German patent No. 1,110,518 specification, An amino permutation chalcone derivative (reference, such as a U.S. Pat. No. 3,526,501 specification), An oxazole derivative (thing of an indication on U.S. Pat. No. 3,257,203 specifications etc.), A styryl anthracene derivative (reference, such as JP,56-46234,A), full -- me -- non -- a derivative (reference, such as JP,54-110837,A) and a hydrazone derivative (a U.S. Pat. No. 3,717,462 specification ··) JP,54·59143,A, a 55·52063 official report, a 55·52064 official report, A 55-46760 official report, a 55-85495 official report, a 57-11350 official report, Reference, such as a 57-148749 official report and JP,2-311591,A, a stilbene derivative (JP,61-210363, A and a 61-228451 official report --) A 61-14642 official report, a 61-72255 official report, a 62-47646 official report, A 62-36674 official report, a 62-10652 official report, a 62-30255 official report, A 60-93445 official report, a 60-94462 official report, a 60-174749 official report, Reference, silazane derivatives (U.S. Pat. No. 4,950,950 specification), such as a 60-175052 official report, The conductive polymer oligomer

(especially thiophene oligomer) currently indicated by a polysilane (JP,2-204996,A), an aniline system copolymer (JP,2-282263,A), and JP,1-211399,A can be mentioned. Although the above mentioned thing can be used as an ingredient of a hole-injection layer A porphyrin compound (thing of the indication to JP,63-2956965,A etc.), an aromatic series tertiary amine compound and a styryl amine compound (a U.S. Pat. No. 4,127,412 specification --) JP,53-27033,A, a 54-58445 official report, a 54-149634 official report, A 54-64299 official report, a 55-79450 official report, a 55-144250 official report, It is desirable reference, such as a 56-119132 official report, a 61-295558 official report, a 61-98353 official report, and a 63-295695 official report, and to use especially an aromatic series tertiary amine compound. As an example of representation of the above mentioned porphyrin compound, porphin, 1, 10 and 15, 20 tetrapod phenyl 21H, and 23H porphin copper (II), 1, 10, 15, 20 tetrapod phenyl 21H, and 23H-porphin zinc (II), 5, 10, 15, 20-tetrakis (pentafluorophenyl)-21H, and 23H-porphin, Silicon phthalocyanine oxide, aluminum phthalocyanine chloride, A phthalocyanine (non-metal), a dilithium phthalocyanine, a copper tetramethyl phthalocyanine, A copper phthalocyanine, a chromium phthalocyanine, a zinc phthalocyanine, a lead phthalocyanine, titanium phthalocyanine oxide, phthalocyanine, a copper octamethyl phthalocyanine, etc. can be mentioned. moreover, as an example of representation of said aromatic series tertiary amine compound and a styryl amine compound N, N, N', and N' ... the - tetra-phenyl -4 and 4' - diamino phenyl ·· N, N'-diphenyl N, N'-screw (3-methylphenyl) [1 and 1'-biphenyl] 4, 4'-diamine (it outlines Following TPD), 2 and 2-screw (4-G p-tolylamino phenyl) propane, 1, and 1-screw (4-G p-tolylamino phenyl) cyclohexane, N, N, N', and N' -- the - tetra -- p-tolyl -4 and 4' · diamino phenyl · · 1 and 1·screw (4·G p·tolylamino phenyl)·4·phenylcyclohexane, A screw (4-dimethylamino-2-methylphenyl) phenylmethane, a screw (4-G p-tolylamino phenyl) phenylmethane, N, N'-diphenyl-N, N'-JI (4-methoxypheny) - 4 and 4 -- 'diamino biphenyl, N and N, N', N' -- the - tetra-phenyl -4 and 4' - diamino phenyl ether ·· 4 and 4'-screw (diphenylamino) KUODORI phenyl, N and N, N-Tori (p-tolyl) amine, 4-(G p-tolylamino)-4'-[4 (G p-tolylamino) Styryll stilbene, 4.N N-diphenylamino (2-diphenyl vinyl) benzene, 3-methoxy-4'-N and N-diphenylamino still benzene, N-phenyl carbazole, Have in intramolecular two fused aromatic rings indicated by U.S. Pat. No. 5,061,569. For example, 4 and 4' screw [ - ] [N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl (it outlines Following NPD), moreover JP,4-308688,A · indicating · having · \*\*\*\* · a triphenylamine · a unit · three · a \*\* · a starburst ·· a mold ·· connecting ·· having had ·· four ·· four ·· ' ·· four ·· ' ·· tris ·· [ ·· N · (3-methylphenyl) · N · phenylamino · ] · · a triphenylamine (it outlines Following

MTDATA) -- etc. -- It can mention. Moreover, inorganic compounds, such as p mold-Si besides the above mentioned aromatic series JIMECHIRI DIN system compound shown as an ingredient of a luminous layer and the p mold SiC, can also be used as an ingredient of a hole injection layer, the compound which mentioned the hole injection layer above . for example, a vacuum deposition method, a spin coat method, the cast method, and LB ·· it can form by thin film izing by well-known approaches, such as law. The thickness as a hole injection layer is usually 5nm · 5 micrometers, although there is especially no limit. This hole-injection layer may consist of one layer which consists of kinds of the ingredient mentioned above, or two sorts or more, or may carry out the laminating of the hole-injection layer which consists of a compound of another kind to said hole-injection layer. Moreover, an organic-semiconductor layer is a layer which helps the hole injection or electron injection to a luminous layer, and what has the conductivity more than 10-10 S/cm is suitable for it. As an ingredient of such an organic semiconductor layer, conductive DIN DORIMA, such as conductive oligomer, such as \*\* thiophene oligomer and \*\* arylamine oligomer, and \*\* arylamine DIN DORIMA, etc. can be used.

[0065] (4) -3 electron injection layer one side electron injection layer is a layer which helps impregnation of the electron to a luminous layer, and its electron mobility is large, and an adhesion improvement layer is a layer which especially adhesion with cathode becomes from a good ingredient in this electron injection layer. As an ingredient used for an electron injection layer, 8-hydroxyquinoline, the metal complex of the derivative, or an OKISA diazole derivative is mentioned preferably, for example. Moreover, especially as an ingredient used for an adhesion improvement layer, the metal complex of 8-hydroxyquinoline or its derivative is suitable. As an example of the metal complex of the above mentioned 8-hydroxyquinoline or its derivative, the metal chelate oxy-NOIDO compound containing the chelate of an oxine (generally an eight quinolinol or 8-hydroxyquinoline) is mentioned. on the other hand — as an OKISA diazole derivative — a general formula (II) — and (III) (IV) —

[0066]

[Formula 9]

$$N = N$$

$$\Delta \Gamma^{10} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{11}$$

$$\Delta \Gamma^{12} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{14} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{13}$$

$$\Delta \Gamma^{12} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{14} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{12} \cdots$$

$$\Delta \Gamma^{12} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{14} = 0 \rightarrow \Delta \Gamma^{14} = \frac{1}{0} \prod_{A} \Delta \Gamma^{12} \cdots$$

[0067] (... Ar10, Ar11, and Ar12 and Ar13 are alike the inside Ar10-Ar13 of a formula, respectively, and it is set, even if it is mutually the same, it may differ, and the aryl group which is not permuted [ a permutation or ] is shown, respectively, and it shows the ant rain radical which is not permuted [ Ar14 permutation or ].) ... the electron transport compound expressed is mentioned. Here, as an aryl group, a phenyl group, a biphenyl radical, an anthranil, a peri RENIRU radical, a pyrenyl radical, etc. are mentioned, and a phenylene group, a naphthylene radical, a biphenylene radical, an anthracenylene group, a PENIRENIREN radical, a pyrenylene radical, etc. are mentioned as an ant rain radical. Moreover, as a substituent, the alkyl group of carbon numbers 1·10, the alkoxy group of carbon numbers 1·10, or a cyano group is mentioned. This electron transport compound has the desirable thing of a thin film plasticity. The following can be mentioned as an example of the above mentioned electron transport compound.

[0068]

[Formula 10]

[0069] (4) An anode plate or cathode is prepared as a lower electrode of a '4. lower electrode organic EL device. As an anode plate, the metal or transparent electrode of a high work function is desirable. As a desirable example, it is ITO, In-Zn-O, and SnO2. Transparence oxide electrodes, such as Sb and ZnO: aluminum, are mentioned. As other desirable examples, although Pt, Au, nickel, etc. are mentioned, since adhesion is weak, as for Pt, Au, etc., it is desirable to use the combination of Au/refractory metal. Mo, W, Cr, Ta, etc. can be mentioned as a suitable example of a refractory metal here. Au/aluminum, Pt/aluminum, an An/aluminum alloy, a Pt/aluminum alloy, etc. can be mentioned as a suitable example.

[0070] As cathode, low work metallic compounds, such as a silicon ghost of HOU-ized metals (LaB6 etc.) and a rare earth metal and TiN, can mention as a suitable example. It is not necessarily appropriate for the metal alloy used conventionally [, such as Mg:Ag and aluminum:Li, ] to be inferior to corrosion resistance, and to use as a lower electrode. [0071] (4) In order to realize, the description, i.e., the high numerical aperture, of -5. counterelectrode this invention, it is desirable to take out light from a counterelectrode 33, as shown in drawing 1. for this reason - being alike - transparency - light transmission needs to be 30% or more of transparent electrode preferably. When it is an anode plate in a counterelectrode, it is ITO (In-Sn-O), In-Zn-O, and SnO2. : Sb, ZnO:aluminum, etc. can be used preferably.

[0072] In the case of the cathode instead of an anode plate, it is the alloy film which contains alkali metal or alkaline earth metal at 0.1-5-mol %, and since a thing 15nm or less has light transmission, thickness can use preferably. As a parent of an alloy, aluminum, In, Zn, Pb, Bi, etc. can be used preferably. ITO, In-Zn-O, SnO2 which are furthermore a transparent electrode on the above mentioned alloy thin film: Field resistance will become [become below 200hms / \*\*, and ] low resistance comparatively and be desirable if the laminating of S, ZnO:aluminum, etc. is carried out. Moreover, as for the above mentioned transparent electrode, it is desirable that it is an amorphous substance, for example, In-Zn-O. It is because an amorphous substance does not have the grain boundary, so it prevents that excel in dampproofing and activity alkali metal or alkaline earth metal in the interface of cathode and an organic layer oxidizes. Furthermore, as for the amorphous conductivity oxide film, the field resistance below 200hms / \*\* is acquired with a room temperature substrate. At a room temperature, ITO which is crystallinity is high resistance and are 100ohms / \*\* extent.

[0073] When the laminating of the transparent electrode is carried out, the above mentioned alloy film may make a layer, may not be continuation film, and even if it is the island-like discontinuity film, since it conducts current to the whole electrode, it can be used.

[0074] (4) Production of ·6. organic EL device (example)

An organic EL device is producible by forming an electron injection layer a hole injection layer and if needed a luminous layer, a transparent electrode (anode plate), and if needed by the ingredient and approach which were illustrated above, and forming an electrode (cathode) further. Moreover, an organic EL device is also producible from an electrode by the above and the reverse order to a transparent electrode.

[0075] The example of production of the organic EL device of a configuration of that a transparent electrode / hole-injection layer / luminous layer / electron injection layer / electrode was prepared one by one on the support substrate below is indicated. First, on a suitable substrate, 1 micrometer or less of thin films which consist of a transparent electrode ingredient is formed by approaches, such as vacuum evaporationo and sputtering, so that it may become the thickness of the range of 10-200nm preferably, and a transparent electrode is produced. Next, a hole-injection layer is prepared on this transparent electrode formation of a hole-injection layer was mentioned above — as — a vacuum deposition method, a spin coat method, the cast method, and LB — although it can carry out by approaches, such as law, it is desirable to form with a vacuum deposition method from the point of the homogeneous film being easy to be obtained and

being hard to generate a pinhole. When forming a hole-injection layer with a vacuum deposition method, although it changes with the crystal structures, recombination structures, etc. of the compound (ingredient of a hole-injection layer) to be used, and the hole-injection layer made into the purpose, as for the vacuum evaporationo condition, it is desirable to choose suitably generally in the source temperature of vacuum evaporation of 50-450 degrees C, a degree of vacuum 10-7 - 10-3torr, an evaporation rate 0.01 - 50 nm/sec, the substrate temperature of -50-300 degrees C and the range of 5nm - 5 micrometers of thickness

[0076] Next, although formation of the luminous layer which prepares a luminous layer on a hole-injection layer can also be formed using a desired organic luminescent material by thin-film-izing organic luminescent material by approaches, such as a vacuum deposition method, sputtering, a spin coat method, and the cast method, it is desirable to form with a vacuum deposition method from the point of the homogeneous film being easy to be obtained and being hard to generate a pinhole. When forming a luminous layer with a vacuum deposition method, although the vacuum evaporationo condition changes with compounds to be used, generally it can be chosen from the same condition range as a hole-injection layer.

[0077] Next, an electron injection layer is prepared on this luminous layer. It is desirable to form with a vacuum deposition method from the need of obtaining the homogeneous film, like a hole injection layer and a luminous layer. Vacuum evaporationo conditions can be chosen from the condition range like a hole injection layer and a luminous layer.

[0078] The laminating of the electrode can be carried out to the last, and an organic EL device can be obtained. An electrode consists of metals and vacuum deposition and sputtering can be used for it. However, in order to protect the organic layer of a substrate from the damage at the time of membrane formation, a vacuum deposition method is desirable.

[0079] As for production of the organic EL device indicated so far, it is desirable that it is consistent by one vacuum suction, and a transparent electrode to an electrode produces. [0080] In addition, luminescence can be observed, if a transparent electrode is made into +, an electrode is made into the polarity of - and the electrical potential difference of 5-40V is impressed, when impressing direct current voltage to an organic EL device. Moreover, even if it impresses an electrical potential difference with a reverse polarity, a current does not flow, and luminescence is not produced at all. Uniform luminescence is observed, only when alternating voltage is furthermore impressed, a transparent electrode becomes + and an electrode becomes the polarity of ·. The wave of the

alternating current to impress is arbitrary and good. In order to carry out separation arrangement superficially and to produce the organic EL device which emits light here, stripe-like a transparent electrode and an electrode are made to cross, direct current voltage is impressed to each electrode, either the X-Y dot-matrix method which makes the amount of intersection emit light, a transparent electrode or an electrode is formed in the shape of a dot, and the active-matrix method which direct current voltage is impressed [ method ] and makes it emit light only into a specific dot part in a switching element like TFT (Thin Film Transister) is held. For example, stripe-like a transparent electrode and an electrode can carry out lift off of whether it etches by the photolithography method, or can form it by approaches, such as masking vacuum evaporationo.

[0081] [Example] - an example explains this invention still more concretely hereafter. [Example 1]

(Production of an active matrix substrate) It is Si two H6 on a glass substrate (white sheet glass). It considered as gas and the alpha Si film of 50nm of thickness was formed using LPCVD. Substrate temperature was 450 degrees C. Next, the XeCl excimer laser was \*\*\*\*(ed) and annealing was performed. They are 188 mJ/cm2 to a first stage eye. With exposure energy, it is a second stage eye 290 mJ/cm2 Exposure energy performed. Thereby, alpha-Si was changed to polish recon. Next, the Pori Si island was prepared by the predetermined pattern. Etching is CF4. It carried out as a type of gas. Next, SiO2 which is gate dielectric film Membranes were formed 100nm of thickness at the substrate temperature of 200 degrees C by ECR-CVD. Next, as a gate electrode, membranes were formed by sputtering and pattern NINGU of the TaN (resistivity of 60micro ohm cm) was carried out. The gate bus also carried out pattern processing at coincidence. Moreover, the lower electrode of a capacitor was processed. Next, it is 4x1015 to a drain and a source field by the ion implantation. P ion of ion / cm2, and energy 80keV was poured in. Next, it is inactive [N/2] about a substrate. It becomes hot for 3 hours, 300 degrees C of ion are activated, and doping was made to be performed in inside effectively. The presentation to which the ion implantation of the polish recon was carried out became the field resistance of 2kohm/\*\*, and was activated. Next, it is SiO2 at ECRCVD as an insulating layer. Membranes were formed. Thickness was 300nm. Next, the source bus (signal line) was produced. The common electrode line which carries out sputtering of the aluminum, has prepared 200nm of thickness, and was shown in coincidence by drawing 2; the up electrode of a capacitor, and Tr2 The source, connection of common electrode Rhine, and Tr1 Pattern processing also of the connection of the source and a signal line was carried out. In addition, a required

contact hole is SiO2 beforehand. Opening was carried out. Next, SiO2 The laminating was carried out by 600nm thickness by the ECRCVD method. Next, by 3 micrometer thickness, on the whole surface, the spin coat of the photoresist was carried out and it was covered. Next, it is a type of gas at RIE CF4 / O2 It carries out and is SiO2 of the topmost part with the etchback method. Flattening was carried out. Next, Tr2 Opening of the drain section was carried out, the alloy of aluminum Si (1 % of the weight of Si) was formed further 50nm of thickness, and ITO (10 % of the weight of Sn) was produced further 50nm of thickness. The substrate temperature at this time was 200 degrees C. It is SiO2 before membrane formation of aluminum Si and ITO at a sensing pin thickness gage. When display flatness was investigated, it was 0.15 micrometers or less. Thereby, aluminum: Si and ITO are Pori Si, Tr1, and Tr2, without disconnecting. It was able to prepare upwards. This is the remarkable effectiveness of this invention. In addition, the magnitude of the pixel of this example was 250micrometerx100micrometer, and although the magnitude of ITO gave the magnitude of an effective luminescence pixel to this, it was 240micrometerx90micrometer. Since it had the lower electrode of organic electroluminescence on Tr1, Tr2, the gate, the source, and a common electrode line, 86% of very big numerical aperture was obtained.

[0082] (Production of an organic electroluminescence layer and a counterelectrode) Ultrasonic cleaning was performed for the active matrix substrate obtained above for 1 minute in isopropyl alcohol. next, this substrate top - the 4 and 4'-screw [N and N-JI (3-methylphenyl) aminol of 80nm of thickness -4" (it is written as "TPD74 film" below.) of phenyl-triphenylamine film was produced. This TPD74 film functions as 1st hole-injection layer. The 4 and 4'-screw [N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl film (it is written as the "NPD film" below.) of 20nm of thickness was formed on this TPD74 film after membrane formation of this TPD74 film. This NPD film functions as 2nd hole injection layer (electron hole transportation layer). Furthermore, the 4 and 4'-screw (2 and 2-diphenyl vinyl) biphenyl film (it is written as the "DPVBi film" below.) of 40nm of thickness was formed on this NPD film after membrane formation of the NPD film. This DPVBi film functions as a blue luminous layer. And the tris (eight quinolinol) aluminum film (it is written as the "Alq film" below.) of 20nm of thickness was formed on this DPVBi film after membrane formation of the DPVBi film. This Alq film functions as an electron injection layer. Next, the alloy film of Mg and Ag was vapor deposited. The vacuum evaporationo rate of 2 yuan was set as 1.4nm: 0.1nm using the vacuum evaporationo approach, and it vapor deposited 10nm of thickness. Next, 200nm of In-Zn-O film was formed in sputtering. In -Zn -O film uses the In-Zn O system sputtering target which is the amorphous oxide film and is In/(In+Zn) =0.83,

and is Ar:O2. It is a vacuum, using mixed gas as an ambient atmosphere. 0.2Pa and sputtering output 2 w/cm2 It carried out on conditions. The Mg:Ag/In·Zn O cascade screen functioned as cathode, and the permeability was 65%.

[0083] (Actuation test) The actuation test of the luminescence equipment obtained above was performed. Test patterns are 100 cd/m2. It checked being outputted in blue with brightness. Since it had the lower electrode on the insulator layer which carried out flattening, a natural indication was given, without a numerical aperture being large and the boundary of the dot of a pixel being conspicuous in image display, and the pixel defect was 1% or less of the total number of pixels (320x240) few.

[0084] It sets in the [example 1 of comparison] example 1, and is SiO2 of the topmost part. Organic electroluminescence luminescence equipment was produced like the example 1 except having formed the lower electrode of aluminum:Si/ITO, without carrying out flattening. However, when this luminescence equipment was examined, the pixel defect was over 10%. When the pixel with a defect was observed in the detail, they are Tr1 and Tr2. The short circuit having arisen in the place prepared, or not emitting light by open circuit of an electrode was observed. Therefore, it became clear that the insulator layer under the lower electrode in which this invention carried out flattening is effective.

[0085] It sets in the [example 2 of comparison] example 1, and they are Tr1 and Tr2 about the lower electrode of aluminum Si/ITO. It was made to be the same as that of an example 1 except having carried out pattern processing, as the part, the part of a gate bus, and the part of a source bus were avoided. When examined, the numerical aperture was falling to 67%, the boundary of a pixel dot was conspicuous in the pixel display, and a good display was not obtained.

#### [0086]

[Effect of the Invention] As explained above, by this invention, a numerical aperture can be large, and generating of an image defect can be prevented effectively, and the organic active EL luminescence equipment in which the image display of high quality is possible can be offered.

#### **DESCRIPTION OF DRAWINGS**

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the A-A line sectional view of drawing 3 showing typically 1 operation gestalt of the organic active EL luminescence equipment of this invention.

[Drawing 2] It is the explanatory view showing the drive circuit of the organic EL device

used for this invention.

[Drawing 3] It is the top view showing typically 1 operation gestalt of the organic active EL luminescence measure of this invention.

[Drawing 4] It is the sectional view showing typically the process which putter izes to an island the polish recon layer of the thin film transistor used for this invention.

[Drawing 5] It is the circuit diagram of the conventional technique organic [TFTEL].

[Drawing 6] It is the sectional view of the A-A' line in drawing 5.

[Drawing 7] It is the sectional view showing other examples of the conventional technique organic [TFTEL].

[Drawing 8] It is the sectional view showing other examples of the conventional technique organic [TFTEL].

[Description of Notations]

- 1 Substrate
- 2 Thin Film Transistor (TFT)
- 21 First Transistor (Tr1)
- 22 Second Transistor (Tr2)
- 23 Capacitor
- 3 Organic EL Device
- 31 Lower Electrode
- 32 Organic Layer
- 33 Counterelectrode
- 4 Interlayer Insulation Film
- 41 Contact Hole
- 42 Gate Insulating Layer
- 43 Gate Electrode
- 44 Silicon Barrier Layer
- 46 Gate Line
- 52 Insulator Layer
- 54 Contact Hole
- 62 Source
- 70 Polish Recon Layer
- 71 Polish Recon Island
- 72 Gate Insulating Layer
- 73 Polish Recon Gate Electrode
- 81 Hole-Injection Electrode
- 82 Electron Injection Electrode

83 Gate Electrode 84 Source Electrode

## (19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公開特許公報(A)

## (11)特許出願公開番号

## 特開平10-189252

(43)公開日 平成10年(1998) 7月21日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>
H 0 5 B 33/26
H 0 1 L 29/786
21/336

H 0 5 B 33/10

**識別記号** 

FI H05B 33/26

33/10 H 0 1 L 29/78

6 1 2 Z

審査請求 未請求 請求項の数6 FD (全 19 頁)

(21)出願番号

特願平8-357028

(22)出願日

平成8年(1996)12月26日

(71)出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72)発明者 細川 地潮

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

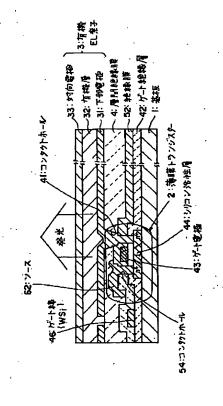
(74)代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

## (54) 【発明の名称】 有機アクティブEL発光装置

#### (57)【要約】

【課題】 開口率が大きく、かつ画像欠陥の発生を有効に防止して、高品質の画像表示が可能な有機アクティブ EL発光装置を提供する。

【解決手段】 基板1上に、複数の薄膜トランジスター (TFT) 2と、このTFTによって駆動される、TFTに対応して配設された複数の有機EL素子3とを有する有機アクティブEL発光装置において、TFT2と有機EL素子3の下部電極31との間に、平坦化された層間絶縁膜4を配設し、かつTFT2のドレイン端子と有機EL素子3の下部電極31とを、層間絶縁膜4に設けられたコンタクトホール41を介して電気的に接続する。



#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、複数の薄膜トランジスター (TFT) と、このTFTによって駆動される、TFT に対応して配設された複数の有機EL素子とを有する有機アクティブEL発光装置において、

TFTと有機EL素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設され、かつTFTの端子と有機EL素子の下部電極とが、層間絶縁膜に設けられたコンタクトホールを介して電気的に接続されてなることを特徴とする有機アクティブEL発光装置。

【請求項2】 前記有機EL素子の対向電極が、透明である請求項1記載の有機アクティブEL発光装置。

【請求項3】 その開口率(実際に発光する部分が画素中に占める割合)が、75%以上である請求項1または2記載の有機アクティブEL発光装置。

【請求項4】 基板上に、XYマトリックス状に配設さ れた複数の走査電極線および信号電極線と、この走査電 極線および信号電極線の近傍に配設された電気スイッチ とを有し、この電気スイッチが走査信号パルスおよび信 号パルスでスイッチ動作を行うことにより、この電気ス イッチに結合された単位画素中の有機EL素子が発光ま たは発光停止して画像表示を行う有機アクティブEL発 光装置において、電気スイッチが、発光画素を選択する 薄膜トランジスター (第一のトランジスター)、および 有機EL素子を駆動する薄膜トランジスター(第二のト ランジスター) のそれぞれ一つ以上から形成されてな り、かつ第一および第二のトランジスターと有機EL素 子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設 され、さらに、第二のトランジスターのドレインと、有 機EL素子の下部電極とが電気的に接続されてなること を特徴とする有機アクティブEL発光装置。

【請求項5】 前記第一および第二のトランジスターの 活性層が、ポリシリコンから形成されてなる請求項4記 載の有機アクティブEL発光装置。

【請求項6】 前記有機EL素子の対向電極が、透明である請求項4または5記載の有機アクティブEL発光装置。

#### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機アグティブE L発光装置に関する。さらに詳しくは、民生用、工業用 の表示機器、カラーディスプレイ等に好適に用いられる 有機アクティブEL発光装置に関する。

[0002]

【従来の技術】従来、有機EL発光装置(ディスプレイ)においては、XYマトリックスにおいて単純駆動をさせ画像表示を行う技術が知られている(特開平2-37385号公報、特開平3-233891号公報など)。しかし、このような単純駆動では、線順次駆動を行うので、走査数が数百本と多い場合には、要求される

瞬間輝度が観察される輝度の数百倍となるため、下記問 題があった。

【0003】(1) 駆動電圧が高くなる。電圧は直流定常電圧下の場合の通常2~3倍以上となるため効率が低下する。従って消費電力が大きくなる。

- (2)瞬間的に流れる電流量が数百倍となるため、有機 発光層が劣化しやすくなる。
- (3) (2) と同様に通電電流が非常に大きいため、電極配線の電圧降下が問題となる。
- 【0004】上記の(1)~(3)を解決する手法とし て、下記のアクティブマトリックス駆動が提案されてい る。すなわち、蛍光体として無機物である乙nSを用 い、さらにアクティブマトリックス駆動を行うディスプ レイが開示されている(米国特許第4143297 号)。しかし、この技術においては、無機蛍光体を用い るため駆動電圧が100V以上と高く問題となってい た。同様な技術は、IEEE Trans Elect ron Devices, 802 (1971) にも記載 されている。一方、有機蛍光体を用いアクティブマトリ ックス駆動を行うディスプレイも最近、多数開発されて いる(特開平7-122360号公報、特開平7-12 2361号公報,特開平7-153576号公報,特開 平8-54836号公報,特開平7-111341号公 報,特開平7-312290号公報,特開平8-109 370号公報,特開平8-129359号公報,特開平 8-241047号公報および特開平8-227276 号公報など)。上記の技術は、有機蛍光体を用いること により駆動電圧が10V以下と大幅に低電圧化し、高効 率な有機蛍光体を用いる場合には効率は3 lm/w~ 15 lm/wの範囲で極めて高効率であること、ま た、単純駆動に比べて高精細ディスプレイの駆動電圧が 1/2~1/3となり、消費電力が低減できること等の 極めて優れた特徴があったが、下記の点が問題となって いた。

【0005】(1)通常、透光性の基板上に、α-S i, ポリシリコンなどからなるTFT (thin fi lm transister) が、画素一つに対して少 なくとも一つまたは二つ設けられ、さらにTFTを選択 してONするために走査電極線および信号電極線が前記 基板上に多数設けられていた。TFT素子と有機EL素 子とを絶縁するためにTFT上には、窒化シリコンまた は酸化シリコンなどからなる絶縁膜が設けられている。 しかしながら、TFTの厚さは、ゲートおよびドレイ ン、ソース電極を含め $0.2 \mu m \sim 1 \mu m$ となり凹凸が あるので、これを避けて下部のEL電極を形成する必要 があり、画素中に非発光部分が生ずるのを避けることが できなかった。透光性基板側より光を取り出す場合に は、さらに走査電極線および信号電極線も光を遮るた め、画素の開口率(実際に発光する部分が画素中に占め る割合)が小さかった。例えば特開平7-122362

号公報に示されたものでは開口率がわずか56%であり、非発光部分がめだち良好な画像が得られないという問題があった。同時に特開平8-241047号公報の図3に示されたものでは、高い輝度が得られにくいという問題もあった。

【0006】(2)また、特開平8-241047号公報の図3に示されたもののように、TFTを覆う絶縁膜の開口部に下部EL電極を形成する場合、絶縁膜のパターン端を良好にエッチングするのは技術的に困難であるため、エッチング残りなどの不具合が生じやすく、発光欠陥が発生し問題となっていた。

【0007】(3)一方、基板側の反対側から光を取り出す場合には、開口率が大きくなり良好な画像を得られる可能性がある。しかしながら通常は、TFTを覆う層間絶縁膜が平坦化されていないため、TFTの凹凸により上部に形成される有機EL素子の欠陥が多発し問題となる。有機EL素子は、有機層が $0.05\mu$ m $\sim0.2\mu$ mと薄層であるので下部の凹凸により容易に欠陥が生成される。このため、特開平8-54836号公報の図1および図2に示されたもののように、走査電極線,信号電極線,TFTが形成されている部分以外に有機EL素子を形成するのが通常であった。従って、従来のものの開口率は小さくならざるを得なかった。

【0008】従来の技術についてさらに具体的に説明する。図5は、従来技術における有機TFTELの回路図である。基板上にゲートライン(走査電極線)とソースライン(信号電極線)が複数形成されておりXYマトリックスをなしている。このゲートライン、ソースラインには一画素あたり2個のTFT21、22が図5に示すように連結しており、さらに、一画素中には第2のTF 122のゲートを定電位にホールドするためのコンデンサー23が形成されており、この第2のTFT22により、図において斜線で示される有機EL素子3が駆動される。

【0009】図中A-A、線における画素の断面図を図 6に示す。第2のTFT22は図7に示すようにポリシ リコンを活性層として形成されており、ポリシリコンア イランド71の厚さは200nm, ゲートSiO2 の厚 さは100nm、ポリシリコンゲート73の厚さは30 0 nm、ポリシリコンゲートを囲む $S i O_2$  の厚さは500 n mである。図からわかるように、ポリシリコンア イランド71およびポリシリコンゲート73の厚さ分だ けTFT部分は凹凸を形成する。凸部は500~600 nmだけ突出する。従って、TFT上に有機EL素子を 形成する意図があったとしても、この凹凸により下部電 極、有機層および対向電極の断線が生じやすく良好な有 機ELの発光画素を形成することができない。また、こ の従来技術では、下部電極であるITO31から、すな わち基板1側から光を取り出すことになる。このためT FT、ゲートライン、ソースラインが光を遮るため画素

の開口率が小さくなるという問題があった。

【0010】また、他の従来の技術としては、図8に示すように、上部に対向電極である正孔注入電極81(通常は透明である)を設けた技術がある。しかしながら、この技術においてもTFT部分の凹凸があるため、この部分を避けて電子注入電極82が形成され、発光する画素が形成されている。また、ゲート電極83、ソース電極84およびドレイン電極85上の凹凸もこのままでは問題となるため、有機層32はこの箇所を避けて形成されている。

#### [0011]

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、開口率が大きく、かつ画像 欠陥の発生を有効に防止して、高品質の画像表示が可能 な有機アクティブEL発光装置を提供することを目的と する。

## [0012]

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明によれば、基板上に、複数の薄膜トランジスター(TFT)と、このTFTによって駆動される、TFTに対応して配設された複数の有機EL素子とを有する有機アクティブEL発光装置において、TFTと有機EL素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設され、かつTFTの端子と有機EL素子の下部電極とが、層間絶縁膜に設けられたコンタクトホールを介して電気的に接続されてなることを特徴とする有機アクティブEL発光装置が提供される。

【0013】また、その好ましい態様として、前記有機 EL素子の対向電極が、透明である有機アクティブEL 発光装置が提供される。

【0014】また、その好ましい態様として、その開口率(実際に発光する部分が画素中に占める割合)が、75%以上である有機アクティブEL発光装置が提供される。

【0015】また、基板上に、XYマトリックス状に配 設された複数の走査電極線および信号電極線と、この走 査電極線および信号電極線の近傍に配設された電気スイ ッチとを有し、この電気スイッチが走査信号パルスおよ び信号パルスでスイッチ動作を行うことにより、この電 気スイッチに結合された単位画素中の有機EL素子が発 光または発光停止して画像表示を行う有機アクティブE L発光装置において、電気スイッチが、発光画素を選択 する薄膜トランジスター (第一のトランジスター)、お よび有機EL素子を駆動する薄膜トランジスター (第二 のトランジスター)のそれぞれ一つ以上から形成されて なり、かつ第一および第二のトランジスターと有機EL 素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配 設され、さらに、第二のトランジスターのドレインと、 有機EL素子の下部電極とが電気的に接続されてなるこ とを特徴とする有機アクティブEL発光装置が提供され

る。

【0016】さらに、その好ましい態様として、前記第一および第二のトランジスターの活性層が、ポリシリコンから形成されてなる有機アクティブEL発光装置が提供される。

#### [0017]

【発明の実施形態】以下、本発明の実施形態を、図面を参照しつつ具体的に説明する。図1は、本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態を模式的に示す断面図で、図3におけるA-A´線断面図である。図2は、本発明に用いられる有機EL素子の駆動回路を示す説明図である。図3は、本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態を模式的に示す平面図である。図4は、本発明に用いられる薄膜トランジスターのポリシリコン層をアイランドにパター化する過程を模式的に示す断面図である。

【0018】本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態は、図1に示すように、基板1上に複数の薄膜トランジスター(TFT)2と、このTFT2によって駆動される、TFT2に対応して配設された複数の有機 EL素子3とを有し、TFT2と有機EL素子3の下部電極31との間に、平坦化された層間絶縁膜4が配設され、かつTFT2のドレイン端子と有機EL素子3の下部電極31とが、層間絶縁膜4に設けられたコンタクトホール41を介して電気的に接続されている。

【0019】また、有機EL素子は、TFTによって以下のように駆動される。図2および図3に示すように、XYマトリックス状に配設された複数の走査電極線(Yj~ $Y_{j+n}$ )および信号電極線( $X_i$ ~ $X_{i+n}$ )と、この電極線( $Y_j$ ~ $Y_{j+n}$ )および( $X_i$ ~ $X_{i+n}$ )近傍に配設された電気スイッチ(TFT2)とを有している。この電気スイッチは、第一のトランジスター(Tr1)21および第二のトランジスター(Tr2)22のそれぞれー以上から形成されている。この電気スイッチが走査信号パルスおよび信号パルスでスイッチ動作を行うことにより、この電気スイッチに結合された単位画素中の有機EL素子3が、発光または発光停止して、画像表示を行う。

【0020】なお、第一のトランジスター(Tr1)2 1は、発光画素を選択する。また、第二のトランジスター(Tr2)22は、有機EL素子を駆動する機能を有する。

【0021】また、前記層間絶縁膜4は、第一のトランジスター(Trl)21および第二のトランジスター(Tr2)22と、有機EL素子3の下部電極31との間に配設され、さらに、第二のトランジスター(Tr2)のドレイン端子と、有機EL素子の下部電極31とが電気的に接続されている。

【0022】以下、さらに具体的に説明する。本発明に 用いられる有機EL素子3は、図2に示すようにアクテ ィブマトリックス回路によって駆動される。走査電極線(ゲート線)( $Y_j \sim Y_{j+n}$ )を介して伝達されるパルスと信号電極線( $X_i \sim X_{i+n}$ )を介して伝達されるパルスによって所望の第一のトランジスター( $T_{r1}$ ) 21が選択され、共通電極線( $C_i \sim C_{i+n}$ )と第一のトランジスター( $T_{r1}$ ) 21のソースとの間に形成されるコンデンサー23に電荷が充電される。これにより、第二のトランジスター( $T_{r2}$ ) 22はON状態となる。このON状態は、次にゲートパルスが伝達され

となる。このON状態は、次にゲートパルスが伝達されるまでホールドされ第二のトランジスター (Tr2) 2 2のドレイン端子に接続されている有機EL素子3の下部電極31に電流を供給しつづけることになる。

【0023】また、本発明においては、図1に示すように、薄膜のトランジスター2(第一のトランジスター (Tr1),第二のトランジスター(Tr2))、およびゲート線( $Y_j \sim Y_{j+n}$ ),信号電極線( $X_i \sim X_{i+n}$ )上に層間絶縁膜4が設けられており、かつ、この層間絶縁膜4は平坦化されている。

【0024】また、有機EL素子3の下部電極31が層間絶縁膜4上に設けられており、この層間絶縁膜4に形成されたコンタクトホール41を介して、第二のトランジスター(Tr2)のドレイン端子と下部電極31とが電気的に接続している。

【0025】さらに、この下部電極は、図3に示すように第一のトランジスター(Tr1)21,第二のトランジスター(Tr2)22,信号電極線,ゲート線46の上に設けられている。なお、図3中、一点鎖線で囲まれた部分が有機EL素子の下部電極31を示している。

# 【0026】以下、各構成要素について説明する。1. 基板

本発明に用いられる基板は、絶縁性であり、水晶または ガラスのような透明材料であることが好ましい。ここ で、透明とは、有機アクティブEL発光装置における実 際的な使用に対して充分な光を透過する性質を有するこ とを意味する。例えば、所望の周波数範囲で50%以上

の光を透過するものは透明と考えられる。また、低温度 ガラスとは、約600℃以上の温度で融解または歪むガラスをいう。

「【0027】2. 薄膜トランジスター

本発明において、薄膜トランジスター(TFT)は有機 E L 素子の駆動のために用いられ、具体的には電気スイッチとして第一のトランジスター(Tr1) および第二 のトランジスター(Tr2) のそれぞれ一以上から形成される。このTr1およびTr2の活性層は、図1において $n^+$ /i/ $n^+$ と示された部分であり、 $n^+$ はN型にドーピングされた部位、iはドーピングされていない部位を示す。この活性層のドーピングがされた部位はP型にドーピングされた $P^+$ であっても良い。この活性層

は、好ましくはポリシリコンで形成される。ポリシリコ

- 7

ンは、アモルファスSi に比べ通電に対し充分な安定性を示す。

【0028】他の好ましい材料としては、有機半導体を 挙げることができる。チオフエンオリゴマー、ポリ(P ーフェニレンビニレン)などがある。

【0029】ポリシリコンは、各種CVD法により積層 しうるが、好ましくはプラズマCVD法により図4

(a) に示すように、 $\alpha-S$ i を積層する。

【0030】その後、図4(b)に示すように、KrF(248nn)レーザーなどのエキシマーレーザーによりアニール結晶化する(SID´96, Digestoftechnical papers P17~28)。α-Siの好ましい膜厚は、40~200nmである。エキシマレーザーのアニーリングとしては、基板温度100~300mJ/cm²のエネルギー量をもつレーザー光でアニール化するのが好ましい。

【0031】また、ポリシリコン層は、図4(c)に示すように、フォトリソグラフィによりアイランドにパターン化される。用いられる基板は水晶のような結晶材料であるが、好ましくは低温度ガラスのようなより高価でない材料である。ガラス基板が用いられるときにはTFTーELの製造全体がガラスの溶融または歪みを回避し、能動領域内にドーパントの外側拡散(out-diffusion)を回避するために低プロセス温度で実施される。このようにしてガラス基板に対して全ての製造段階は1000℃以下、好ましくは600℃以下でなされなければならない。

【0032】次に、図4(d)に示すように、絶縁ゲート材料42がポリシリコンアイランド71上および絶縁基板1の表面にわたり積層される。絶縁材料は好ましくはプラズマ増強CVD(PECVD)または減圧CVD(LPCVD)のような化学蒸着(CVD)により積層される二酸化シリコンである。ゲート酸化物絶縁層の厚さは好ましくは約100~200nmである。基板温度としては250~400℃が好ましくさらに高品質の絶縁ゲート材料を得るためにはアニールを300~600℃で1~3hr程度施すのが好ましい。

【0033】次の段階では、図4 (e) に示すように、 ゲート電極43を蒸着またはスパッタリングで成膜す る。好ましい膜厚は200~500nmである。

【0034】次に、図4(f)~(h)に示すように、ゲート電極43をパターンニングする。ただしここでA 1ゲートを使用するときは、絶縁するために陽極酸化を 2回にわたり行うのが好ましい。陽極酸化に関しては特公平8-15120号公報に詳細に開示されている。

【0035】次に、図4(i)に示すように、イオンドーピングによりn<sup>+</sup> またはP<sup>+</sup> の部位を形成する。別の方法としてはゲートとしてポリシリコンを用いる次の技術がある。この技術では図1に示すポリシリコンゲート

ント後にソースとドレイン領域はポリシリコン領域内に 形成されるようにポリシリコンアイランド上にフォトリ ソグラフィすることによりパターン化される。ゲート電 極材料は好ましくはアモルファスシリコンから形成され たポリシリコンである。イオンインプラントは好ましく は砒素であるN型ドーパントで導電化される。ポリシリ コンゲート電極はまたコンデンサーの底部電極として供

電極43はゲート絶縁層上に積層され、イオンインプラ

される。このように製造はより複雑でなく、より高価でないものとすることができる。図1に示すゲートバス46は絶縁層上で適用され、パターン化される。ゲートバスは好ましくは珪素化タングステン(WSi)のような金属珪素化物である。これは金属珪素化物の面抵抗値が数Ω/□以下にすることができるからである。

【0036】しかし、WSiなどの金属珪素化物に代えてAl合金、Al、Cr、W、Moなどの金属を用いても良い。このような場合、より低い面抵抗値が実現するメリットがある。また、ゲートとして、TaNを用いても良い。次の段階では、二酸化シリコン、チッ化シリコン、ポリイミドなどで構成される絶縁膜を全体にわたり適用する。

【0037】次に、信号電極線および走査電極線を形成する。A1合金,A1, Cr, W, Moなどの金属線をフォトリソグラフィにより形成するとともに、Tr1, Tr2 のドレイン,ソースなどのコンタクトは、上記絶縁膜を開口した箇所で行う。この絶縁膜は、図1052 の符号で示される。上記の内、 $SiO_2$  は、例えばTEOS (テトラエトキシシラン)をガスとして基板温度 $250\sim400$  Cの間に設定しPECVDにより得ることができる。またECR-CVDで基板温度を $100\sim300$  Cとしても得ることができる。

【0038】3.層間絶縁膜

本発明に用いられる平坦化された層間絶縁膜は、下記 (1) または(2) の方法で形成することができる。

(1)ポリイミドコーティング膜のスピンコートによる <sup>成時</sup>

ポリイミドとしては市販のコーティング液を用いエッチングにより図1に示すコンタクトホール41を形成しドレイン接続部を開口する。さらに絶縁膜52,ゲート絶縁膜42をエッチングにて開口しドレインを露出させる。ポリイミドは平坦化された表面を与えるため好ましい一例である。

(2) プラズマエッチングによるエッチバック法 各種CVD法、プラズマCVD、PECVD(プラズマインハンスド CVD),LPCVD(減圧CVD) 法などによりシリカを好ましくは  $1~\mu$  m $\sim 3~\mu$  m成膜する。さらにポリマーコーティングを全面に行う。さらに反応性イオンエッチング(RIE)によりガス種をCF4と酸素の混合ガスとしエッチングを行う。エッチング膜厚は好ましくは  $0.5~\mu$  m $\sim 2~\mu$  m $\tau$  である。この方法

により平坦化された層間絶縁膜( $SiO_2$ )を得ることができる。この方法には、シリカの他、PSG, BSG (リンシリカガラス、ボロンシリカガラス)を用いることもできるし、 $Si_3N_4$ などチッ化シリコン系化合物を用いることがもできる。

## 【0039】4. 有機EL素子

本発明に用いられる有機EL素子においては、有機物層(有機層)として、再結合領域および発光領域を少なくとも有するものが用いられる。この再結合領域および発光領域は、通常発光層に存在するため、本発明において 10は、有機物層として発光層のみを用いてもよいが、必要に応じ、発光層以外に、例えば正孔注入層、電子注入層、有機半導体層、電子障壁層、付着改善層なども用いることができる。

【0040】次に本発明に用いられる有機EL素子の代表的な構成例を示す。もちろん、これに限定されるものではない。

- ①透明電極 (陽極) / 発光層/電極 (陰極)
- ②透明電極(陽極)/正孔注入層/発光層/電極(陰極)
- ③透明電極(陽極)/発光層/電子注入層/電極(陰極)
- ④透明電極(陽極)/正孔注入層/発光層/電子注入層/電極(陰極)
- ⑤陽極/有機半導体層/発光層/陰極
- ⑥陽極/有機半導体層/電子障壁層/発光層/陰極
- ⑦陽極/正孔注入層/発光層/付着改善層/陰極などの構造を挙げることができる。これらの中で、通常 ④の構成が好ましく用いられる。

## 【0041】(4)-1. 発光層

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により次のような化合物が挙げられる。まず、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記の一般式であらわされる化合物が挙げられる。

[0042]

(6)

【化1】



10

【0043】この一般式において、Xは下記化合物を示す。

[0044]

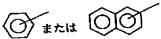
【化2】



【0045】ここでnは、2,3,4または5である。 また、Yは下記化合物を示す。

[004.6]

【化3】



【0047】上記化合物のフェニル基、フェニレン基、ナフチル基に炭素数1~4のアルキル基、アルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等が単独または複数置換したものであってもよい。また、これらは互いに結合し、飽和5員環、6員環を形成してもよ。また、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性がよく平滑な蒸着膜の形成のために好ましい。具体的には以下の化合物である。特に、pークオーターフェニル誘導体、pークインクフェニル誘導体が好ましい。

[0048]

【化4】

(7)

(1)

12

(2)

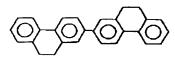
(3)

(4)

(5)

【0049】 【化5】

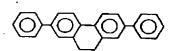
(6)



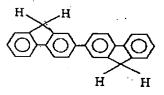
13

【0050】 【化6】

(7)

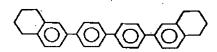


(8)



(9)

(10)



(9)

15 (11)

16

(12)

(13)

(14)

[0051]

【化7】

(10)

17

18

(15)

$$\bigvee_{H} N - \bigodot - \bigodot - \bigodot - \bigodot - \bigvee_{H}$$

(16)

$$\bigcirc \\ \mathsf{N} - \bigcirc \\ \mathsf{O} - \bigcirc \\ \mathsf{O} - \bigcirc \\ \mathsf{O} \\ \mathsf{O}$$

(17)

3, 5, 3^^^, 5 \*\*\*\* ーテトラーtープチルーp-クィンクフェニル (TBQ)

【0052】次に、青色から緑色の発光を得るためには、例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を挙げることができる。

【0053】具体的に化合物名を示せば、例えば、特開 昭59-194393号公報に開示されているものを挙 げることができる。その代表例としては2,5-ビス (5, 7-ジ-t-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリ(5, 7-t-ペンチルー2-ベンゾオキサゾリル)ス チルベン、4,4'ービス[5,7ージー(2ーメチル -2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]スチルベ ン、2,5-ビス(5,7-ジ-t-ペンチルー2-ベ ンゾオキサゾリル)チオフェン、2,5ービス[5-チオフェン、2,5ービス[5,7ージー(2ーメチル -2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]-3,4ジ オフェニルチオフェン、2,5-ビス(5-メチルー2 ーベンゾオキサゾリル)チオフェン、4,4'ービス (2-ベンゾオキサゾリル) ビフェニル、5-メチルー 2- [2- [4- (5-メチル-2-ベンゾオキサゾリ

ル)フェニル] ビニル] ベンゾオキサゾール、2-[2-(4-クロロフェニル) ビニル] ナフト [1, 2-d] オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2-2、(p-フェニレンジビニレン) ービスベングチアゾール等のベングチアゾール系、2-[2-[4-(2-ベンゾイミダゾリル) フェニル] ビニル] ベンゾイミダゾール、2-[2-(4-カルボキシフェニル) ビニル] ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤を挙げることができる。さらに、他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ1971,628~637頁および640頁に列挙されている。

【0054】前記キレート化オキシノイド化合物としては、例えば特開昭63-295695号公報に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(ベンゾ[f]-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチルー8-キノリノラート)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチルー8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノール

リウム、ビス (5-クロロー8-キノリノール) カルシウム、ポリ [亜鉛 (II) ービス (8-ヒドロキシー5-キノリノニル) メタン] 等の8-ヒドロキシキノリン系 金属錯体やジリチウムエピントリジオン等を挙げることができる。

【0055】また、前記スチリルベンゼン系化合物としては、例えば欧州特許第0319881号明細書や欧州特許第0373582号明細書に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、1,4ービス(2ーメチルスチリル)ベンゼン、1,4ービス(3ーメチルスチリル)ベンゼン、1,4ービス(4ーメチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1,4ービス(2ーエチルスチリル)ベンゼン、1,4ービス(3ーエチルスチリル)ベンゼン、1,4ービス(3ーエチルスチリル)ベンゼン、1,4ービス(2ーメチルスチリル)ー2ーメチルベンゼン、1,4ービス(2ーメチルスチリル)ー2ーメチルベンゼン、1,4ービス(2ーメチルスチリル)ー2ーエチルベンゼン等を挙げることができる。

【0056】また、特開平2-252793号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も発光層の材料として用いることができる。その代表例としては、2、5-ビス(4-メチルスチリル)ピラジン、2、5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2、5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2、5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2、5-ビス(4-ビフェニル)ビニル]ピラジン、2、5-ビス[2-(4-ビフェニル)ビニル]ピラジン、2、5-ビス[2-(1-ピレニル)ビニル]ピラジン等を挙げることができる。その他のものとして、例えば欧州特許第0387715号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることもできる。

【0057】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレー ト化オキシノイド化合物、およびスチリルベンゼン系化 合物等以外に、例えば12-フタロペリノン(J. Appl. Phys., 第27卷, L713 (1988年))、1, 4 ージフェニルー1, 3ーブタジエン、1, 1, 4, 4ー テトラフェニルー1, 3ブタジエン(以上Appl. Phys.) Lett., 第56巻、L799 (1990年))、ナフタル イミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ペリ レン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサ ジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、ま たは第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによっ て開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘 導体(特開平2-220393号公報)、ピラジリン誘 導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタ ジエン誘導体(特開平2-289675号公報)、ピロ ロピロール誘導体(特開平2-296891号公報)、 スチリルアミン誘導体 (Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、クマリン系化合物(特開平 2-191694号公報)、国際公開公報WO90/1 3 1 4 8 ♥ Appl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982 (1991) に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材 20

料として用いることができる。

【0058】本発明では、特に発光層の材料として、芳香族ジメチリディン系化合物(欧州特許第0388768号明細書や特開平3-231970号公報に開示のもの)を用いることが好ましい。具体例としては、1,4-フェニレンジメチリディン、4,4-フェニレンジメチリディン、2,6-ナフチレンジメチリディン、1,4-ビフェニレンジメチリディン、1,4-ビフェニレンジメチリディン、9,10-アントラセンジイルジルメチリディン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下、DTBPBBiと略記する)、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下DPVBiと略記する)等、およびそれらの誘導体を挙げることができる。

【0059】さらに、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式 ( $R_2-Q_3-AL-O-L$ であらわされる化合物も挙げられる。)

(上記式中、Lはフェニル部分を不運でなる炭素原子6 ~24個の炭化水素であり、O-Lはフェニラート配位 子であり、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、 Roはアルミニウム原子に置換8ーキノリノラート配位 子が2個上回り結合するのを立体的に妨害するように選 ばれた8-キノリノラート環置換基を表す) 具体的に は、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(パラー フェニルフェノラート)アルミニウム(III) (以下P (1-ナフトラート) アルミニウム (III ) (以下PC - 17)等が挙げられる。その他、特開平6-9953 号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色 の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホスト としては上記に記載した発光材料、ドーパントとして は、青色から緑色にまでの強い蛍光色素、例えばクマリ ン系あるいは上記記載のホストとして用いられているも のと同様な蛍光色素を挙げることができる。具体的に は、ホストとしてジスチリルアリーレン骨格の発光材 料、特に好ましくは例えばDPVBi、ドーパントとし てはジフェニルアミノビニルアリーレン、特に好ましく は例えばN、N-ジフェニルアミノビニルベンゼン(D PAVB)を挙げることができる。

【0060】白色の発光を得る発光層としては、特に制限はないが下記のものを挙げることができる。

①有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定 し、トンネル注入を利用して発光させるもの(ヨーロッ パ公開特許第0390551号公報)

②①と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの(特開平3-23 0584号公報)

③二層構造の発光層が記載されているもの(特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公

報)

④発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの(特開平4-51491号公報) ⑤青色発光体(蛍光ピーク380nm~480nm)と 緑色発光体(480nm~580nm)とを積層させ、 さらに赤色蛍光体を含有させた構成のもの(特開平6-207170号公報)

⑥青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色蛍光体を含有する構成のもの(特開平7-142169号公報)中でも、⑤の構成のものが好ましく用いられる。また、赤色の発光を得る赤色蛍光体の例を[化8]に示す。

【0061】 【化8】

(ジシアノメチレンピラン) (HsCə)əN ✓<u>○</u>○ ○ ○ ○

(フェノキサゾン)

(ルプレン)

【0062】前記材料を用いて、発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構

22

造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違に より区分することができる。また、特開昭57-517 81号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と 材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをス ピンコート法等により薄膜化することによっても、発光 層を形成することができる。このようにして、形成され る発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じ て適宜選択することができるた、通常5 n m ~ 5 μ m の 範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機能を 併せ持つものである。すなわち、①注入機能;電界印加 時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することがで き、陰極または電子注入層より電子を注入することがで きる機能、②輸送機能;注入した電荷(電子と正孔)を 電界の力で移動させる機能、③発光機能;電子と正孔の 再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、があ る。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやす さに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度であ らわされる輸送能に大小があてもよいが、どちらか一方 の電荷を移動することが好ましい。

【0063】(4)-2. 正孔注入層

次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5 e V以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば10<sup>4</sup>~10<sup>6</sup> V/cmの電界印加時に、少なくとも10<sup>-6</sup>cm<sup>2</sup> / V・秒であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、E L素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0064】具体例としては、例えばトリアゾール誘導 体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オ キサジアゾール誘導体(米国特許3,189,447号 明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-1 6096号公報等参照)、ポリアリールアルカン誘導体 (米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 82 0,989号明細書、同第3,542,544号明細 書、特公昭45-555号公報、同51-10983号 公報、特開昭51-93224号公報、同55-171 05号公報、同56-4148号公報、同55-108 667号公報、同55-156953号公報、同56-. 36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体およびピ ラゾロン誘導体(米国特許第3、180、729号明細 書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-8 8064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同5

6-80051号公報、同56-88141号公報、同 57-45545号公報、同54-112637号公 報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジ アミン誘導体 (米国特許第3, 615, 404号明細 書、特公昭51-10105号公報、同46-3712 号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53 435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体 (米国特許第3,567,450号明細書、同第3,1 80,703号明細書、同第3,240,597号明細 書、同第3,658,520号明細書、同第4,23 2, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細 書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-3 5702号公報、同39-27577号公報、特開昭5 5-144250号公報、同56-119132号公 報、同56-22437号公報、西独特許第1,11 0,518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導 体(米国特許第3,526,501号明細書等参照)、 オキサゾール誘導体(米国特許第3, 257, 203号 明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体 (特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノ ン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、 ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明 細書、特開昭54-59143号公報、同55-520 63号公報、同55-52064号公報、同55-46 760号公報、同55-85495号公報、同57-1 1350号公報、同57-148749号公報、特開平 2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体 (特開昭61-210363号公報、同61-2284 51号公報、同61-14642号公報、同61-72 255号公報、同62-47646号公報、同62-3 6674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60 -94462号公報、同60-174749号公報、同 60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体 (米国特許第4, 950, 950号明細書)、ポリシラ ン系 (特開平2-204996号公報)、アニリン系共 重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリ ゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることが できる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用す ることができるが、ポルフィリン化合物 (特開昭63-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第三級 アミン化合物およびスチリルアミン化合物(米国特許第 4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033 号公報、同54-58445号公報、同54-1496 34号公報、同54-64299号公報、同55-79 450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同 61-98353号公報、同63-295695号公報

等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いること が好ましい。上記ポルフィリン化合物の代表例として は、ポルフィン、1、10、15、20-テトラフェニ ルー21H, 23Hーポルフィン銅(II)、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフ ィン亜鉛(II)、5, 10, 15, 20-テトラキス (ペンタフルオロフェニル) -21H, 23H-ポルフ ィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウム フタロシアニンクロリド、フタロシアニン(無金属)、 ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシア ニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛 フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロ シアニンオキシド、Mgフタロシアニン、銅オクタメチ ルフタロシアニン等を挙げることができる。また、前記 芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物 の代表例としては、N, N, N', N'ーテトラフェニ ルー4, 4'ージアミノフェニル、N, N'ージフェニ ル-N, N' -ビス- (3-メチルフェニル) - [1]1'ービフェニル]ー4,4'ージアミン(以下TPD と略記する)、2,2-ビス(4-ジ-p-トリルアミ ノフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ジ-p-ト リルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N'ーテトラーpートリルー4, 4'ージアミノフェニ ル、1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニ ル) - 4 - フェニルシクロヘキサン、ビス (4 - ジメチ ルアミノー2ーメチルフェニル)フェニルメタン、ビス (4-ジ-p-トリルアミノフェニル) フェニルメタ ン、N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ (4-メトキ シフェニル) -4, 4' -ジアミノビフェニル、N, N, N', N'-テトラフェニルー4, 4'-ジアミノ フェニルエーテル、4,4'ービス(ジフェニルアミ ノ)クオードリフェニル、N, N, Nートリ(pートリ ル) アミン、4-(ジーp-トリルアミノ) -4'-[4(ジーpートリルアミノ) スチリル] スチルベン、 4-N、N-ジフェニルアミノー(2-ジフェニルビニ ル) ベンゼン、3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニ ルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール、 米国特許第5,061,5.69号に記載されている2個 の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス [N-(1-ナフチル) -N-フェニルアミノ] ビ フェニル (以下NPDと略記する)、また、特開平4-308688号公報で記載されているトリフェニルアミ ンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4''-トリス [N-(3-メチルフェニル)-N ーフェニルアミノ] トリフェニルアミン(以下MTDA TAと略記する) 等を挙げることができる。また、発光 層の材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化 合物の他、p型-Si,p型SiC等の無機化合物も正 孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入 層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコ

24

ート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は $5 n m \sim 5 \mu$  mである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/c m以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンデンドリマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

【0065】(4)-3電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層で\*

【0067】(式中 $Ar^{10}\sim Ar^{13}$ はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、 $Ar^{10}$ と $Ar^{11}$ および $Ar^{12}$ と $Ar^{13}$ はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なっていてもよく、 $Ar^{14}$ 置換または無置換のアリレーン基を示す。)で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェ 30 ニル基、アントラニル基、ペリレニル基などが挙げられ、アリレーン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペ

\*あって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、例えば8ーヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8ーヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8ーヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシン(一般に8ーキノリノールまたは8ーヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式(II),(III)および(IV)

【0066】 【化9】

ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

【0068】

# 【0069】(4)-4. 下部電極

有機EL素子の下部電極として陽極または陰極が設けられる。陽極としては高仕事関数の金属または透明電極が好ましい。好ましい例としては、ITO, In-Zn-O, SnO2:Sb, ZnO:Alなどの透明酸化物電極が挙げられる。他の好ましい例としては、Pt, Au, Ni等が挙げられるが、Pt, Au等は付着が弱いのでAu/高融点金属の組み合わせを用いることが好ましい。ここで高融点金属の好適例としては、Mo, W, Cr, Taなどを挙げることができる。Au/Al, Pt/Al, An/Al合金、Pt/Al合金なども好適例として挙げることができる。

【0070】陰極としては、ホウ化金属(LaB6など)、希土類金属のケイ素化物、TiNなどの低仕事金属化合物が好適例として挙げることができる。Mg:Ag,Al:Liなど従来用いられてきた金属合金は耐食性に劣り下部電極として用いるのは必ずしも適切ではない。

# 【0071】(4)-5. 対向電極

本発明の特徴、すなわち高開口率を実現するには、図1に示すように対向電極33から光を取り出すのが好ましい。このためには、透明性好ましくは光線透過率が30%以上の透明電極である必要がある。対向電極で陽極である場合にはITO(In-Sn-O), In-Zn-O, SnO2:Sb, ZnO:Alなどを好ましく用いることができる。

【0072】陽極ではなく陰極の場合は、アルカリ金属またはアルカリ土類金属を0.1~5モル%で含有する合金膜であって膜厚が15nm以下のものは光線透過率を持つため好ましく用いることができる。合金の母体と

しては、Al, In, Zn, Pb, Bi などを好ましく 用いることができる。さらに上記合金薄膜上に透明電極であるITO, In-Zn-O,  $SnO_2:S$ , ZnO:A l などを積層するならば面抵抗値が $20\Omega$ / $\square$ 以下となり比較的低抵抗となって好ましい。また、上記透明電極は、非晶質、例えばIn-Zn-Oであることが好ましい。なぜなら、非晶質は結晶粒界がないため、防湿性に優れ、陰極と有機層の界面にある活性なアルカリ金属またはアルカリ土類金属が酸化することを防止するからである。さらには非晶質導電性酸化物膜は室温基板にて $20\Omega$ / $\square$ 以下の面抵抗値が得られる。結晶性であるITOは室温では高抵抗であり $100\Omega$ / $\square$ 程度である。

28

【0073】透明電極が積層されている場合には、上記合金膜は層をなして連続膜でなくても良く、島状の不連続膜であっても、電極全体に導電するため用いることができる。

【0074】(4)-6.有機EL素子の作製(例)以上例示した材料および方法により発光層、透明電極(陽極)、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、さらに電極(陰極)を形成することにより、有機EL素子を作製することができる。また、電極から透明電極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0075】以下に支持基板上に透明電極/正孔注入層/発光層/電子注入層/電極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、適当な基板上に、透明電極材料からなる薄膜を1μm以下、好ましくは10~200nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して、透明電極を作製する。次に、この透明電極上に正孔注入層を設ける。正

孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピン コート法、キャスト法、LB法等の方法により行なうこ とができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホー ルが発生しにくい等の点から、真空蒸着法により形成す ることが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成 する場合、その蒸着条件は、使用する化合物(正孔注入 層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合 構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450 ℃、真空度10<sup>-7</sup>~10<sup>-3</sup>torr、蒸着速度0.01 ~50nm/sec、基板温度-50~300℃、膜厚 5 n m~5 μ mの範囲で適宜選択することが好ましい。 【0076】次に正孔注入層上に発光層を設ける発光層 の形成も、所望の有機発光材料を用いて、真空蒸着法, スパッタリング、スピンコート法、キャスト法等の方法 により有機発光材料を薄膜化することにより形成できる が、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成し にくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好 ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その 蒸着条件は、使用する化合物により異なるが、一般的に 正孔注入層と同じ様な条件範囲の中から選択することが できる。

【0077】次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と同様条件範囲から選択することができる。

【0078】最後に、電極を積層して有機EL素子を得ることができる。電極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。

【0079】これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して透明電極から電極まで作製することが好ましい。

【0080】なお、有機EL素子に直流電圧を印加する 場合、透明電極を+、電極を-の極性にして、5~40 Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の 極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じ ない。さらに交流電圧を印加した場合には、透明電極が +、電極が一の極性になったときのみ均一な発光が観測 される。印加する交流の波形は任意でよい。ここで、平 面的に分離配置して発光する有機EL素子を作製するに は、ストライプ状の透明電極および電極を交差させ、そ れぞれの電極に直流電圧を印加し、交差部分を発光させ るX-Yドットマトリックス方式と透明電極または電極 のいずれかをドット状に形成し、TFT (Thin Film Tr ansister) のようなスイッチング素子にて特定のドット 部分だけに直流電圧を印加して発光させるアクティブマ トリックス方式が挙げられる。例えば、ストライプ状の 透明電極および電極はフォトリソグラフィー法にてエッ 30

チングするかリフトオフするか、またはマスキング蒸着 等の方法にて形成することができる。

【0081】 [実施例] 以下、本発明を実施例によって さらに具体的に説明する。

#### [実施例1]

(アクティブマトリックス基板の作製) ガラス基板 (白 板ガラス)上にSi2 H6 をガスとしてLPCVDを用 いて膜厚50nmのα-Si膜を成膜した。基板温度は 450℃であった。次に、XeClエキシマレーザーを 走掃しアニーリングを行なった。第一段目に188m J  $/\mathrm{\,c\,m^2}$  の照射エネルギーで、第二段目を290 $\mathrm{m\,J/}$  $c m^2$  の照射エネルギーで行なった。これにより $\alpha - S$ iをポリシリコンに変化させた。次に、ポリSi島を所 定のパターンで設けた。エッチングはCF4をガス種と して行なった。次に、ゲート絶縁膜であるSiO2をE CR-CVDで基板温度200℃で膜厚100nm成膜 した。次に、ゲート電極として $TaN(60\mu\Omega \cdot cm)$ の比抵抗値)をスパッタリングにより成膜し、パターン ニングした。同時にゲートバスもパターン加工した。ま た、コンデンサーの下部電極を加工した。次に、イオン 注入によりドレインとソース領域に $4 \times 10^{15}$  イオン /c $m^2$ 、エネルギー80keVのPイオンを注入した。 次に、基板を不活性N2の中で300℃、3時間熱し、 イオンを活性化し、ドーピングが有効に行なわれるよう にした。ポリシリコンのイオン注入された組成は2 k Ω ✓口の面抵抗値となり活性化された。次に、絶縁層とし て、ECRCVDでSiO2を成膜した。膜厚は300 nmであった。次に、ソースバス (信号ライン) を製膜 した。AIをスパッタリングし膜厚200nm設けてあ り、同時に図2で示された共通電極線、コンデンサーの 上部電極、Tr2 のソースと共通電極ラインの連結、T r1 のソースと信号ラインの連結もパターン加工した。 なお、必要なコンタクトホールはあらかじめSiO2に 開口させておいた。次に、SiO2をECRCVD法に よって600mmの膜厚で積層した。次に、フォトレジ ストを3μmの膜厚で全面上にスピンコートし覆った。 次に、RIEにてガス種をCF4 /O2 としてエッチバ ック法にて最上部のSiO2を平坦化した。次に、Tr 2 のドレイン部を開口し、さらにAl:Si(Sil重 量%)の合金を膜厚50nm成膜し、さらにITO(S n10重量%)を膜厚50nm製膜した。このときの基 板温度は200℃であった。触針膜厚計にてAl:Si およびITOの成膜前のSiO2の平坦度を調べたとこ ろ0. 15 μ m以下であった。これにより、A l:Si およびITOは断線することなく、ポリSi, Trl, T r 2 の上に設けることができた。これは、本発明の顕 著な効果である。なお、本実施例の画素の大きさは25  $0 \mu m \times 100 \mu m$ であり、これに対し ITOの大きさ は有効な発光画素の大きさを与えるが240μm×90  $\mu$  m  $\tau$  book. Tr1, Tr2,  $\tau$   $\tau$   $\tau$   $\tau$ 

共通電極線上に有機ELの下部電極を備えているので極めて大きな86%の開口率が得られた。

【0082】(有機EL層および対向電極の作製)上記 で得られたアクティブマトリックス基板をイソプロピル アルコール中で超音波洗浄を1分間行なった。次に、こ の基板上に膜厚80nmの4, 4'ービス[N, Nージ (3-メチルフェニル) アミノ] -4" -フェニルート リフェニルアミン膜(以下「TPD74膜」と略記す る。)を製膜した。このTPD74膜は、第1の正孔注 入層として機能する。このTPD74膜の成膜に続け て、このTPD74膜上に膜厚20nmの4、4′ービ ス「N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフ エニル膜(以下「NPD膜」と略記する。) を成膜し た。このNPD膜は、第2の正孔注入層(正孔輸送層) として機能する。さらに、NPD膜の成膜に続けて、こ のNPD膜上に膜厚40nmの4, 4' ービス (2, 2 ージフェニルビニル)ビフェニル膜(以下「DPVBi 膜」と略記する。)を成膜した。このDPVBi膜は、 青色発光層として機能する。そして、DPVBi膜の成 膜に続けて、このDPVBi膜上に膜厚20nmのトリ ス (8-キノリノール) アルミニウム膜 (以下「Alq 膜」と略記する。)を成膜した。このAlq膜は、電子 注入層として機能する。次に、MgとAgの合金膜を蒸 着した。2元蒸着方法を用い蒸着レートを1.4nm: 0.1 nmに設定し膜厚10 nm蒸着した。次に、スパ ッタリングにてIn -Zn -O膜を200nm成膜し た。In - Zn - O膜は非晶質酸化物膜であり、In / (In + Zn) = 0.83であるIn - Zn O系スパッ タリングターゲットを用い、Ar:O2 の混合ガスを雰 囲気として真空 0.2 Pa,スパッタリング出力2w / c m<sup>2</sup> の条件で行なった。Mg:Ag/In - Zn O 積層膜は陰極として機能し、その透過率は65%であっ

【0083】(作動テスト)上記で得られた発光装置の作動テストを行なった。テストパターンが100cd/m<sup>2</sup>の輝度で青色にて出力されているのを確認した。平坦化した絶縁膜上に下部電極を備えているので、開口率が大きく画像表示において画素のドットの境界が目立つことなく自然な表示がされ、また画素欠陥が少なく全画素数(320×240)のうち1%以下であった。

【0084】 [比較例1] 実施例1において、最上部の  $SiO_2$  は平坦化せずにAl:Si/ITOの下部電極 を成膜したこと以外は実施例1と同様にして有機EL発光装置を作製した。ただし、この発光装置を試験したところ画素欠陥は10%を越えていた。欠陥のある画素を詳細に観察したところTr1, Tr2 が設けられているところで短絡が生じているかまたは電極の断線により発光していないことが観察された。従って本発明の平坦化した下部電極下の絶縁膜は、有効であることが判明し

32

【0085】 [比較例2] 実施例1において、A1:Si/ITOの下部電極を、Tr1, Tr2 の部分、ゲートバスの部分およびソースバスの部分を避けるようにしてパターン加工したこと以外は実施例1と同様にした。試験を行なったところ開口率は67%に低下しており、画素表示において画素ドットの境界が目立ち良好な表示が得られなかった。

#### [0086]

【発明の効果】以上説明したように本発明によって、開口率が大きく、かつ画像欠陥の発生を有効に防止して、 高品質の画像表示が可能な有機アクティブEL発光装置 を提供することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施 形態を模式的に示す、図3のA-A線断面図である。

【図2】本発明に用いられる有機EL素子の駆動回路を示す説明図である。

【図3】本発明の有機アクティブEL発光措置の一実施 形態を模式的に示す平面図である。

【図4】本発明に用いられる薄膜トランジスターのポリシリコン層をアイランドにパター化する過程を模式的に示す断面図である。

【図5】従来技術の有機TFTELにおける回路図であ る。

【図6】図5におけるA-A'線の断面図である。

【図7】従来技術の有機TFTELの他の例を示す断面 図である。

【図8】従来技術の有機TFTELの他の例を示す断面 図である。

# 。 【符号の説明】

- 1 基板
- 2 薄膜トランジスター (TFT)
- 21 第一のトランジスター (Tr1)
- 22 第二のトランジスター (Tr2)
- 23 コンデンサー
- 3 有機EL素子
- 31 下部電極
- 32 有機層
- 33 対向電極
- 40 4 層間絶縁膜
  - 41 コンタクトホール
  - 42 ゲート絶縁層
  - 43 ゲート電極
  - 44 シリコン活性層
  - 46 ゲート線
  - 5 2 絶縁膜
  - 54 コンタクトホール
  - 62 ソース
  - 70 ポリシリコン層
- 50 71 ポリシリコンアイランド

(18)

33

73 ポリシリコンゲート電極・

81 正孔注入電極

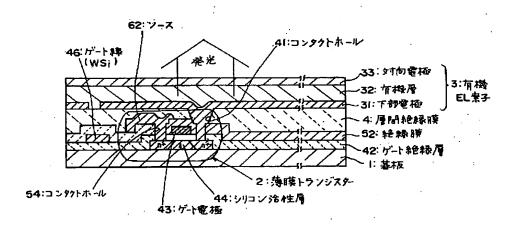
72 ゲート絶縁層

82 電子注入電極

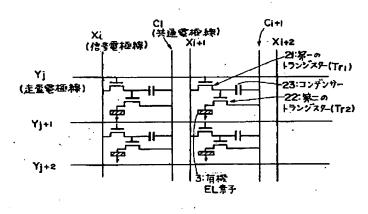
83 ゲート電極

84 ソース電極

【図1】

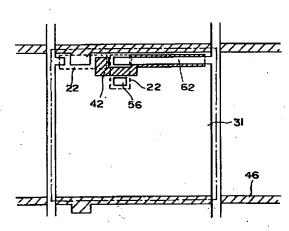


【図2】

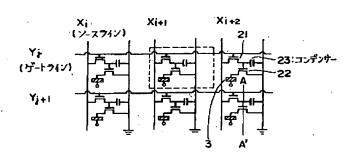


【図3】

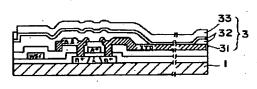
34



【図5】

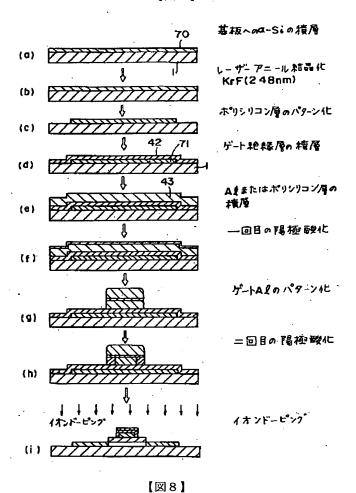


【図6】



【図4】

【図7】



81: 正孔注入電極 41 32 82: 壹子注入電極 83: 扩-十電極 85: ドレノン電極

フロ・アイランド

84:ソース電極